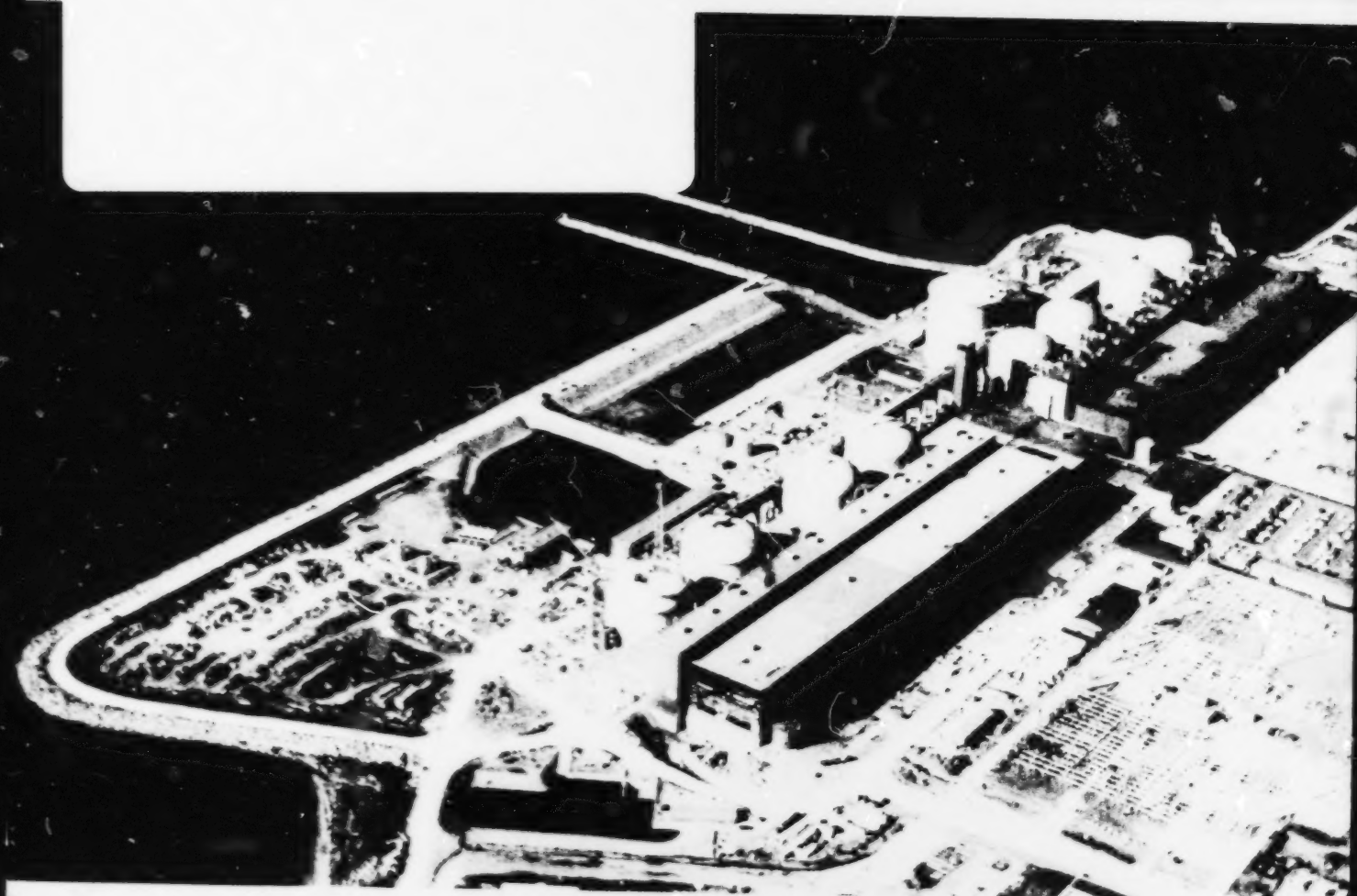
Environment Canada Environnement Canada

Radionuclide Content of Some Canadian Surface Waters: A Report on the National Radionuclides Monitoring Program, 1981-1984

A.S. Baweja, S.R. Joshi and A. Demayo



SCIENTIFIC SERIES NO. 156

INLAND WATERS/LANDS DIRECTORATE
WATER QUALITY BRANCH
OTTAWA, CANADA, 1987

(Disponible en français sur demande)

Canada

87-05079/

Cover photograph–

Nuclear power station at Pickering, Ontario. *(Courtesy of Atomic Energy of Canada Limited)*

Environment Canada Environnement Canada

Radionuclide Content of Some Canadian Surface Waters: A Report on the National Radionuclides Monitoring Program, 1981-1984

A.S. Baweja,* S.R. Joshi† and A. Demayo *

*Water Quality Branch
Environment Canada
Ottawa, Ontario

†National Water Research Institute
Environment Canada
Burlington, Ontario

SCIENTIFIC SERIES NO. 156

INLAND WATERS/LANDS DIRECTORATE
WATER QUALITY BRANCH
OTTAWA, CANADA, 1987

(Disponible en français sur demande)

Published by authority of
the Minister of the Environment

© Minister of Supply and Services Canada 1987

Cat. No. En 36-502/156E

ISBN 0-662-15445-2

Contents

	Page
ABSTRACT	v
RÉSUMÉ	v
RADIOACTIVITY UNITS	vi
INTRODUCTION	1
Water Quality Branch monitoring mandate	1
Sources of radionuclides	1
Environmental and health impacts	1
Radionuclide monitoring	4
Objectives	4
DATA COLLECTION PROGRAM	4
Sampling locations	4
Sample collection	5
Analytical methods	5
Water samples	6
Sediment samples	6
Quality assurance	6
RESULTS	6
DISCUSSION	10
Nature of radioactivity	10
Radionuclide levels and trends	10
Cesium-137 and antimony-125	10
Tritium	10
Uranium and radium-226	11
Temporal variations	11
Radionuclide content of sediments	12
Radiological health impacts	12
Water quality guidelines	12
Radiological dose commitment	13
U-238/Ra-226 activity ratios	14
CONCLUSIONS	15
RECOMMENDATIONS FOR FUTURE MONITORING	15
Objectives	15
Sampling locations	15
Radionuclides and laboratory methodology	16
Other radionuclide databases	16
Special problem areas	16
Multi-media sampling	17
Frequency of sampling	17
Non-radiological parameters	17
Sample collection methodology	17
Field sampling quality assurance	17
Laboratory techniques	17
Interpretive reporting	17

Contents (Cont.)

Page

Review of program 17
Estimate of resources 18
Proposed implementation 18

ACKNOWLEDGMENTS 18

REFERENCES 18

APPENDIX 21

Tables

1. Basic properties of environmentally important radionuclides 3
2. Sampling stations monitored by the Water Quality Branch for the National Radionuclides Monitoring Program 4
3. Sampling stations monitored each year during sampling period, 1981 to 1984 8
4. Average radionuclide concentration in surface waters, 1981 to 1984 8
5. Quarterly analyses of surface water samples from Ontario 9
6. Radionuclide concentration in sediments of the Ottawa River, 1982 9
7. Recommended guidelines for radionuclide concentrations in drinking water 12
8. Whole body radiological dose commitment from the use of surface water as a source of drinking water 13
9. Average uranium and radium concentrations, and U-238/Ra-226 activity ratios in surface waters, 1981 to 1984 14

Figures

Figure 1. Uranium-238 decay chain series radionuclides with half-lives and mode of decay 2
Figure 2. Thorium-232 decay chain series radionuclides with half-lives and mode of decay 2
Figure 3. Map showing approximate locations of sampling stations monitored across Canada 5
Figure 4. Gamma-ray spectrum of a 1984 Niagara River water sample showing prominent photopeaks with their energies in keV 7
Figure 5. Relationship of total uranium and Ra-226 concentrations in surface waters when plotted through the origin (11 sampling stations) 15

Abstract

The National Radionuclides Monitoring Program was initiated to assess the radiological status of surface waters at a limited number of sites across Canada. During four years of operation (1981 to 1984), up to 13 locations were sampled monthly for water and two for sediments in 1982. Most water samples were composited annually, but some were composited quarterly to assess the temporal variations. The composites were then analyzed for total U, Ra-226, Cs-137, Sb-125 and tritium.

Levels of the radionuclides monitored are generally low, and no time trends were discernible during the monitoring period. Temporal variations among the quarterly analyses are mostly insignificant. Except for total U at certain locations, all other radionuclide levels were much below the "target concentration" guidelines for Canadian drinking water. The main contribution to the radiological dose commitment was from total U and Ra-226. This dose was below the objective dose of 10 μSv (1 mrem) as stipulated in the Great Lakes Water Quality Agreement of 1978. Contributions from individual radionuclides to cumulative dose were in the order: total U > Ra-226 > tritium > Cs-137 > Sb-125.

The limited sediment data suggest that the nuclear facilities along the Ottawa River, which are the nuclear power generating station (NPD) at Rolphton and the Nuclear Laboratories of the Atomic Energy of Canada Limited at Chalk River, have increased the levels of Cs-137 and Co-60 but have not affected those of Pb-210 and Ra-226.

Total U and Ra-226 activities data suggest disequilibrium; the levels of total U in water were much higher than those of Ra-226. Concentrations of the two radionuclides, however, were positively correlated for most surface waters.

Résumé

Le Programme national de contrôle des radionucléides a été mis en oeuvre pour évaluer la radioactivité des eaux de surface dans un nombre limité d'endroits un peu partout au Canada. Durant les quatre années de son application (de 1981 à 1984), on a prélevé mensuellement des échantillons d'eau à 13 endroits au plus et des échantillons de sédiments à deux endroits en 1982. La plupart des échantillons ont été combinés sur une base annuelle, mais certains l'ont été sur une base trimestrielle dans le but d'évaluer les variations avec le temps. On a dosé le U total, le Ra-226, le Cs-137, le Sb-125 et le tritium dans ces échantillons composites.

Les concentrations de radionucléides étaient généralement faibles, et on n'a discerné aucune variation avec le temps durant la période de contrôle trimestrielle. À l'exception du U total à certains endroits, les concentrations de tous les autres radionucléides étaient bien inférieures à la «concentration cible» stipulée dans les lignes directrices pour la qualité de l'eau potable au Canada. L'U total et le Ra-226 étaient les radionucléides qui contribuaient le plus à la dose engagée. Cette dose était inférieure à la dose visée de 10 μSv (1 mrem) stipulée dans l'Accord de 1978 sur la qualité de l'eau dans les Grands lacs. La contribution de chaque radionucléide à la dose cumulée diminuait dans l'ordre suivant : U total > Ra-226 > tritium > Cs-137 > Sb-125.

D'après des données limitées sur les sédiments, les installations nucléaires situées sur la rivière des Outaouais, c'est-à-dire la centrale nucléaire de Rolphton et les laboratoires nucléaires de l'Énergie atomique du Canada Limitée à Chalk River, sont responsables d'une augmentation des concentrations de Cs-137 et de Co-60; par contre, les concentrations de Pb-210 et de Ra-226 sont restées inchangées.

Les données sur la radioactivité de l'U total et du Ra-226 laissent supposer l'existence d'un déséquilibre; les concentrations de U total dans l'eau étaient de beaucoup supérieures à celles du Ra-226. Cependant, on a établi, pour la plupart des eaux de surface, une corrélation positive entre la concentration de ces deux radionucléides.

Radioactivity Units

The International System of Units (SI) has been used in this report. Basic SI radioactivity units are defined as follows.

becquerel (Bq): A unit of measure of radioactivity which corresponds to one disintegration (transformation) per second (dps).

gray (Gy): This unit is a measure of the biological effectiveness of radiation dose which represents the absorption of one joule of energy per kilogram of tissue.

sievert (Sv): The radiation dose equivalent is expressed in sieverts and is obtained by multiplying the absorbed dose with a quality factor (Q), which is variable depending upon the nature of radiation. For example, the value of Q is 1 for beta particles and gamma rays, whereas for alpha particles it has a value of 20 (U.S. EPA, 1981). N represents any other modifying factors, and is usually assigned a value of unity.

EQUIVALENT UNITS

1 curie (Ci) is equal to 3.7×10^{10} dps, or Bq

1 rad is equal to 100 ergs/g, or 0.01 Gy

1 rem is equal to 100 ergs/g $\times$ Q $\times$ N, or 0.01 Sv

Radionuclide Content of Some Canadian Surface Waters: A Report on the National Radionuclides Monitoring Program, 1981-1984

A.S. Baweja, S.R. Joshi and A. Demayo

INTRODUCTION

Water Quality Branch Monitoring Mandate

Canada is blessed with abundant surface water supplies. In order that water of good quality be available for present and future uses by all Canadians, judicious management programs must be maintained. The Water Quality Branch (WQB) is responsible for providing scientific and technical information, and advice relating to water quality (Water Quality Branch, 1985a). Quality affects the suitability of water for human consumption, fish and other aquatic life, recreation, irrigation, livestock watering and industrial uses. A current high departmental priority is the management of toxic chemicals such that their detrimental effects on the Canadian environment are reduced, or eliminated. Radionuclides are some of the toxic chemicals of concern.

Sources of Radionuclides

Radionuclides are present in the aquatic environment as a result of natural sources and man's activities (Whicker and Schultz, 1982). The major global contribution of man-made radionuclides has largely come from fallout resulting from nuclear weapons testing in the atmosphere. Fallout inputs, however, have significantly decreased since the Limited Nuclear Test Ban Treaty of 1963, which banned large-scale atmospheric testing of nuclear weapons.

The weathering of naturally occurring radioactive minerals containing uranium and thorium series radionuclides (Figs. 1 and 2) usually contributes low concentrations of these radionuclides to large water bodies as can be seen from the data for Lakes Ontario (Durham and Joshi, 1980a) and Huron (Durham and Joshi, 1980b). Nevertheless, elevated concentrations of naturally occurring radionuclides can occur in fresh waters due to rich uranium deposits near the surface (B.C. Royal Commission, 1980) and/or nuclear fuel cycle operations (Hart and McKee, 1965; Platford *et al.*, 1984).

The interaction of cosmic rays with the atmospheric nuclides produces a variety of radionuclides; the overall proportion of such nuclides in the aquatic environment, however, is rather small. Radionuclides present in the atmosphere are generally brought down to the aquatic environment via precipitation scavenging and by dry fallout. Industrial and medical applications of commonly used radionuclides seem to contribute very little to the radiological water quality (Durham and Joshi, 1979a).

Table 1 lists the basic properties of some environmentally significant radionuclides released to the aquatic environment at various stages of nuclear activities. Many of these are also present in the fallout from nuclear weapons testing in the atmosphere.

Environmental and Health Impacts

There are over 200 radionuclides present in the environment. The ionizing radiation – alpha, beta and/or gamma – emitted by these nuclides varies in its physical properties and interacts with the biological matter differently; alpha particles are the most damaging because of their high energy. In this report, results of the measurements and calculated radiation dose are expressed in SI units.

Excessive ionizing radiation is viewed as potentially harmful to humans and biota alike. For example, intense radiation in excess of 10 sieverts (Sv) to the whole human body in a short period of time can be fatal (Johnson and Tutiah, 1985; U.S. EPA, 1981). Lower doses may not be immediately fatal but can cause latent adverse health effects such as initiation of cancer and/or genetic changes. Adverse health effects are generally proportional to the dose received by an individual. However, at low doses, there is a controversy in the scientific literature concerning whether or not there exists a threshold level (stochastic vs. non-stochastic effects) below which no ill health effects are discernible (ICRP, 1977, 1979; Johnson and Tutiah, 1985; U.S. EPA, 1981; Whicker and Schultz, 1982). Generally,

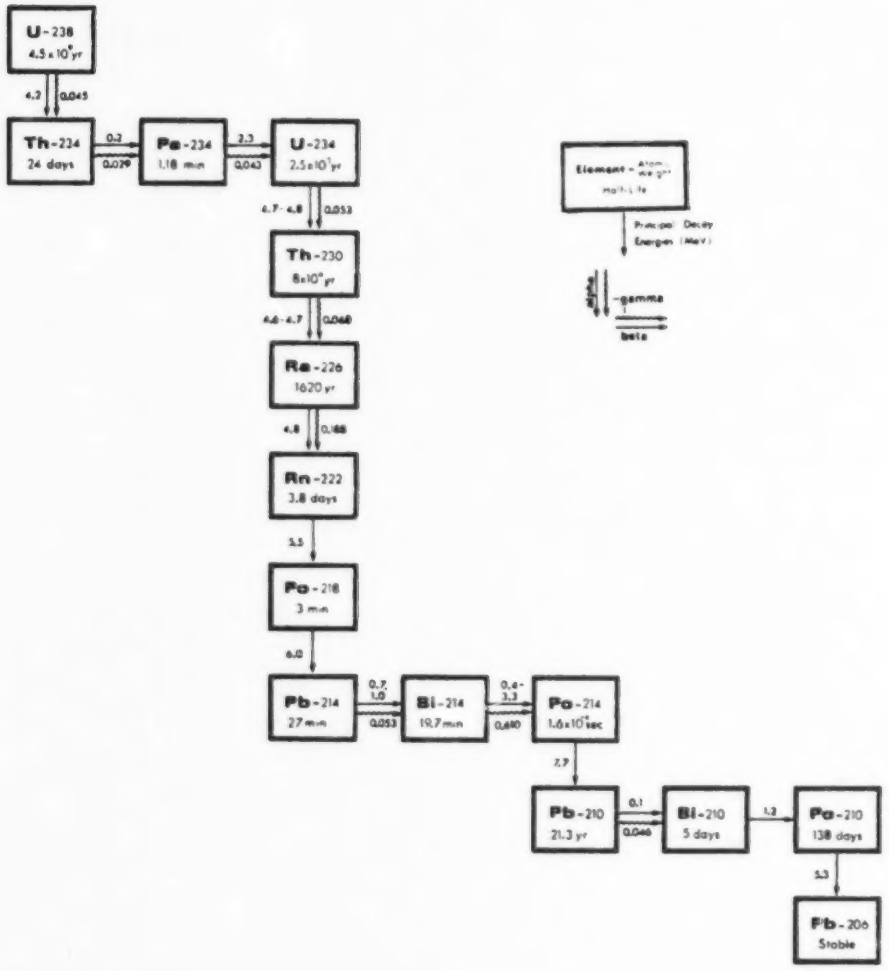


Figure 1. Uranium-238 decay chain series radionuclides with half-lives and mode of decay (Source: B.C. Royal Commission, 1980).

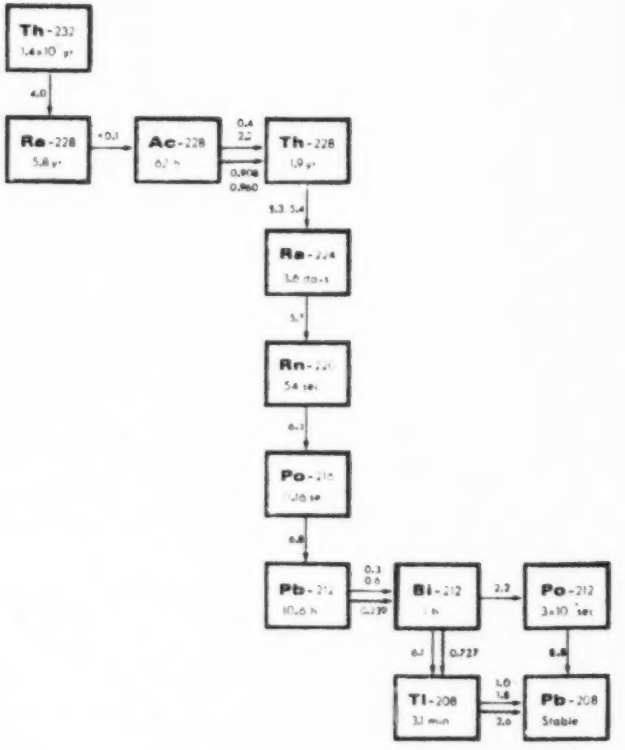


Figure 2. Thorium-232 decay chain series radionuclides with half-lives and mode of decay (Source: B.C. Royal Commission, 1980).

organizations responsible for radiation protection use the linear hypothesis for setting standards and guidelines.

The most significant pathway to man for the radionuclides contained in water is through its consumption as drinking water (U.S. EPA, 1981). Once ingested, the radionuclides usually migrate to certain organs of the body, the so-called "critical organs." For example, radium is deposited in the bone tissue, whereas uranium is lodged in the kidneys. The next important aquatic pathway involves consumption of fish which are known to accumulate radionuclides (Joshi, 1984).

In Canada, the Atomic Energy Control Board (AECB) is responsible for establishing dose limits. It is recommended by the Board that atomic radiation workers may not exceed an annual dose of 50 mSv, while the dose for a member of the public is set at 5 mSv per year. This dose is in addition to what is receivable as background radiation, which is about 2 mSv per year in Canada (Johnson and Tutiah, 1985). Since the effects of ionizing radiation on biota are cumulative, the AECB recommends that the radiation exposure should be kept as low as reasonably achievable -- the ALARA Principle.

Table 1. Basic Properties of Environmentally Important Radionuclides*

Radionuclide	Half-life†	Yield (%)	Decay mode	Comments
		Fission Products		
Sr-90	28.5 y	5.9	β	Chemically and metabolically similar to Ca
Ru-106	369 d	0.4	β	
Sb-125	2.77 y	0.03	β,γ	Also produced as an activation product
I-129	1.57×10^7 y	0.6	γ	Volatile
I-131	8.04 d	2.8	β,γ	Volatile; extensively used in nuclear medicine
Cs-134	2.06 y	0.03	β,γ	Semi-volatile; more significant amounts produced by neutron absorption reactions
Cs-137	30.1 y	6.2	β,γ	Semi-volatile
Ce-144	284 d	5.4	β,γ	
		Activation Products		
H-3	12.33 y	–	β	Also produced by cosmogenic neutrons; significant releases from CANDU power plants
C-14	5730 y	–	β	Also produced by cosmogenic neutrons
Mn-54	313 d	–	γ	Metabolically important element; multiple oxidation states
Fe-55	2.7 y	–	EC	Metabolically important element
Co-60	5.27 y	–	β,γ	
Sr-89	50.5 d	–	β	Chemically and metabolically similar to Ca
Pu-238	87.7 y	–	α	Metabolically extremely toxic element
Pu-239,Pu-240	2.4×10^4 y, 6.5×10^3 y	–	α,α	Metabolically extremely toxic element
Am-241	432 y	–	α,γ	
		Naturally Occurring		
U(U-238,U-235)	4.5×10^9 y, 7.1×10^8 y	–	α,α	
Th(Th-232, Th-230,Th-228)	1.4×10^{10} y, 8.0×10^4 y, 1.9 y	–	α,α,α	
Ra-226	1620 y	–	α	Chemically and metabolically similar to Ca
Ra-228	5.8 y	–	β,γ	Chemically and metabolically similar to Ca
Pb-210	22.3 y	–	β,γ	
Po-210	138 d	–	α	

*Compiled from *The Gamma Rays of the Radionuclides: Tables for Applied Gamma Ray Spectrometry*, Erdtmann and Soyka (1979).
†y = years, d = days.

Radionuclide Monitoring

The Inland Waters Directorate (IWD) is responsible for providing data and information relating to the presence of toxic chemicals in the aquatic environment. Radionuclides are known to exist in surface waters, but the available data are scarce. Other agencies such as provincial departments of the environment and Health and Welfare Canada are carrying out radiological monitoring programs to assess the levels of radionuclides in potable waters across Canada. In such cases, IWD makes arrangements to obtain the data from those agencies. The National Radionuclides Monitoring Program (NRMP), conducted jointly by the Water Quality Branch and the National Water Research Institute (NWRI) of Environment Canada since 1980, does not duplicate those efforts.

Objectives

The objectives of this report are to summarize the available data, identify radiological water quality trends, and assess the environmental significance of the results obtained to date. Based on the analysis of the results and a review of the objectives of the National Radionuclides Monitoring Program, the report will also recommend changes, if necessary. The data collection program results reported are for the period 1981 to 1984 inclusive.

DATA COLLECTION PROGRAM

Sampling Locations

The sampling locations were chosen for their potential for containing higher than background levels of radionuclides in the aquatic environment due to nuclear fuel cycle operations, or due to coal and uranium mineralization/mining activities. In addition, a few baseline sampling stations were included in the sampling program (Water Quality Branch, 1980). Areas of possible concern that were being monitored adequately by other agencies were not included in the program. The sampling stations monitored by the Water Quality Branch are listed in Table 2, and their approximate locations are shown in Figure 3. Generally, sampling near point sources was avoided, as most of these locations are adequately monitored by other agencies.

Table 2. Sampling Stations Monitored by the Water Quality Branch for the National Radionuclides Monitoring Program

Sampling location*	NAQUADAT number	Sampling station: Northern longitude	Sampling station: Western latitude	Reasons for monitoring
		Surface Water Sampling		
1. Ranger Bight, Lab.	00NF 03NG 0004	55°04′54″	59°12′29″	Potential uranium mineralization/exploration
2. Annapolis River, N.S.	00NS 01DC 0001	44°57′14″	65°00′10″	Baseline station
3. McAskill Brook, N.S.	00NS 01FJ 0021	46°09′06″	59°57′47″	Coal mineralization/mining
4. Moose Creek, N.B.	02NB 01AQ 0001	45°07′04″	66°22′44″	Nuclear power generation
5. Petitcodiac River, N.B.	02NB 01BU 0002	46°04′28″	64°47′03″	Uranium fuel assembly plant
6. Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	000N 02HA 0019	43°15′20″	79°03′20″	Industrial waste dumps; possibility of radionuclide leaching into the river
7. Niagara River at Fort Erie, Ont.	–	42°52′00″	78°55′00″	Nuclear fuel reprocessing plant wastes from West Valley, New York
8. St. Lawrence River at Wolfe Island, Ont.	000N 02MA 0030	44°12′00″	76°13′59″	Nuclear-related activities
9. Souris River near Coulter, Man.	00MA 05NF 0001	49°05′27″	100°56′51″	Potential coal mining
10. Red River, Man.	00MA 05OC 0001	49°00′29″	97°12′38″	Industrial activities
11. Saskatchewan River at Man.-Sask. Boundary	00MA 05KH 0001	53°50′30″	101°20′03″	Several coal belts and thermal plants drain into the river
12. Poplar River East, Sask.	00SA 11AE 0008	49°00′00″	105°24′33″	Coal mining area
13. Baker Lake, N.W.T.	01NW 06MA 0001	64°19′09″	96°01′49″	Uranium mineralization/exploration
		Sediment Sampling		
14. Ottawa River/Bissett Creek, Ont.	–	46°10′00″	78°05′00″	Baseline station
15. Ottawa River/Petawawa, Ont.	–	45°52′00″	77°17′00″	Nuclear power generation/nuclear laboratories (CRNL) effluent discharges

*Sampling locations are indicated in Figure 3.

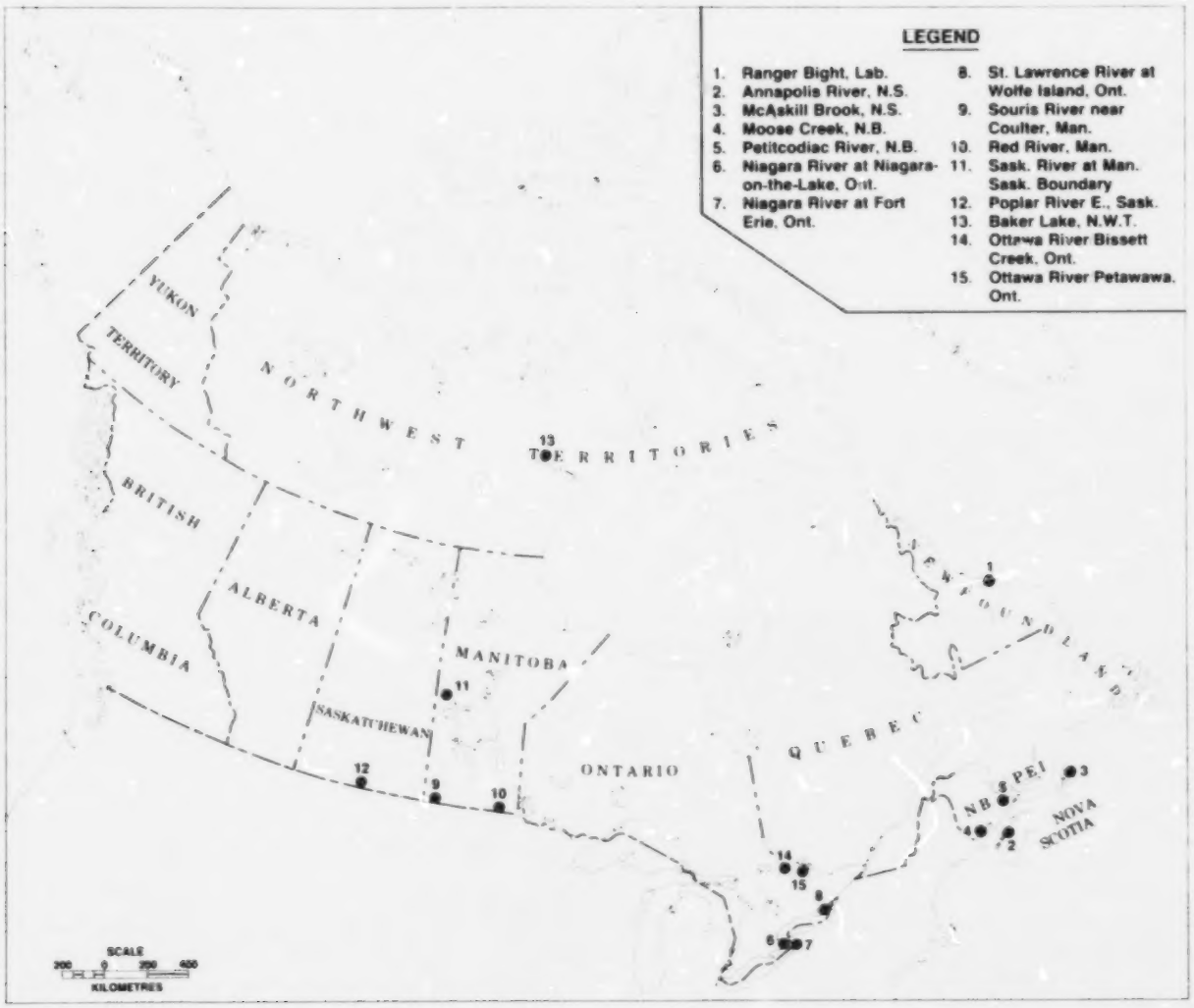


Figure 3. Map showing approximate locations of sampling stations monitored across Canada.

Sample Collection

Water samples were collected by WQB personnel. Four-litre samples were collected monthly in polyethylene containers and acidified with 8 mL concentrated hydrochloric acid as preservative. The 12 monthly samples (January to December) were composited and a representative 5-L sample was sent to the NWRI annually for radionuclide analyses. However, for the St. Lawrence (at Wolfe Island) and Niagara rivers (Niagara-on-the-Lake) samples were composited and analyzed quarterly for three years (1982 to 1984). In addition, water samples from the Niagara River at Fort Erie were also analyzed quarterly for the year 1984. Sediment samples from the Ottawa River at two locations, up and downstream from nuclear facilities, were also collected by the WQB Ontario Region as part of a bottom sediment survey of the river in 1982.

Analytical Methods

Water samples were generally analyzed for tritium, antimony-125, cesium-137, radium-226, and total uranium. The Ottawa River sediments were analyzed for lead-210, cesium-137, radium-226, and cobalt-60. Methods used to analyze the samples are briefly described below.

Water Samples

Samples were analyzed for H-3 immediately upon arrival at NWRI by adding 8-17 mL of PCS, an Amersham scintillation cocktail, to a polyethylene counting vial and counting for 200 min in a Searle Mark II liquid scintillation counter at 12°C. The counter was standardized with an Amersham tritiated water standard and the pulse-height analyzer window adjusted to contain only the central 50% of the H-3 energy peak for minimum background contribution. Background was determined using a near-zero level H-3 water sample.

Uranium was determined on 5-mL aliquots using a Scintrex laser-fluorescence analyzer. Additions of standard amounts of uranium to the water/fluor mixture were made to determine quenching effects. The uranium determined in this way has been defined as "total U" in this report and essentially represents the isotopic composition of natural uranium.

Samples containing 2-50 L water were evaporated to a final volume of 40 mL to determine the gamma-emitting radionuclides Cs-137 and Sb-125 (Durham, 1974; Durham and Joshi, 1984). Concentrated nitric acid was added to the sample in small amounts when the volume reached about 200 mL in order to destroy organic materials. Experiments using respective radiotracers have established that this preconcentration procedure gives quantitative recoveries. The gamma-ray spectra of the final 40-mL samples, in polyethylene bottles, were measured with two liquid nitrogen-cooled hyperpure germanium detectors in chambers shielded with 10 cm of lead. The detectors, in coaxial configuration, were interfaced to a Nuclear Data 6620 nuclear spectrometer set up to count samples for 2.5×10^5 s with 2048 channels of spectral data at 1 keV per channel for each detector. The detectors were standardized using Amersham Canada standardized radionuclides in the same 40-mL geometry. The count rates of the photopeaks were converted to disintegration rates using detector efficiency data and the gamma-emission probabilities of the radionuclides. Figure 4 shows the typical gamma-ray spectrum obtained for a 1984 Niagara River water sample.

The concentrations of Ra-226 in water samples were derived using the standard radon-emanation technique as described elsewhere by Durham and Joshi (1980a), except that the $Ba/RaSO_4$ step was replaced by direct dilution of the above 40-mL sample with doubly-distilled deionized water to the desired level. Unsatisfactory results were obtained when attempts were made to measure Ra-226 by gamma-ray spectrometry using the 186- or 352-keV emissions of this radionuclide.

Sediment Samples

The analyses of the two Ottawa River sediment samples for Pb-210, Ra-226, Cs-137 and Co-60 were also done by gamma-ray spectrometry. The Pb-210 and Ra-226 contents of the samples were measured on intrinsic germanium detectors in planar configuration using photopeaks at 46.5 (Pb-210), and 186 and 352 (Ra-226) keV. The concentrations of Cs-137 and Co-60 were derived from count rates measured on an intrinsic germanium detector in coaxial configuration using the photopeaks at 662 (Cs-137), and 1173 and 1332 (Co-60) keV. Experiments using epoxy-layered samples revealed that emanation of Rn-222 (and the resulting change in geometry) from non-layered samples in standard counting vials is negligible and hence the 352-keV photopeak can be used for measuring Ra-226 in solid samples. Furthermore, the results from the 186-keV photopeak were identical with those afforded by the 352-keV peak. The efficiencies of the detectors were determined at four different thicknesses as described by Joshi (1985).

Quality Assurance

Quality control/quality assurance is an important factor for obtaining reliable data that can be interpreted meaningfully. For this particular program, field staff followed the general procedures as suggested for sample collection and shipping in the "Sampling for Water Quality" manual (Environment Canada, 1983). For sample preservation, the staff were appropriately instructed.

The quality of the analytical data was regularly assessed through continuous participation in intercomparison programs organized by the U.S. Environmental Protection Agency and through selective participation in similar programs organized by the International Atomic Energy Agency. Internal quality control was achieved by analyzing certified reference materials procured from CANMET-EMR (Canada Centre for Mineral and Energy Technology – Energy, Mines and Resources Canada), the U.S. National Bureau of Standards, the U.S. Environmental Protection Agency, and the International Atomic Energy Agency.

RESULTS

Under the National Radionuclides Monitoring Program, radionuclides in some surface waters were monitored across Canada during the period 1981 to 1984. The sampling stations were selected essentially based on potential radiological impacts on water quality due to uranium and coal mineralization, emissions/discharges from nuclear power stations, industrial effluent discharges including

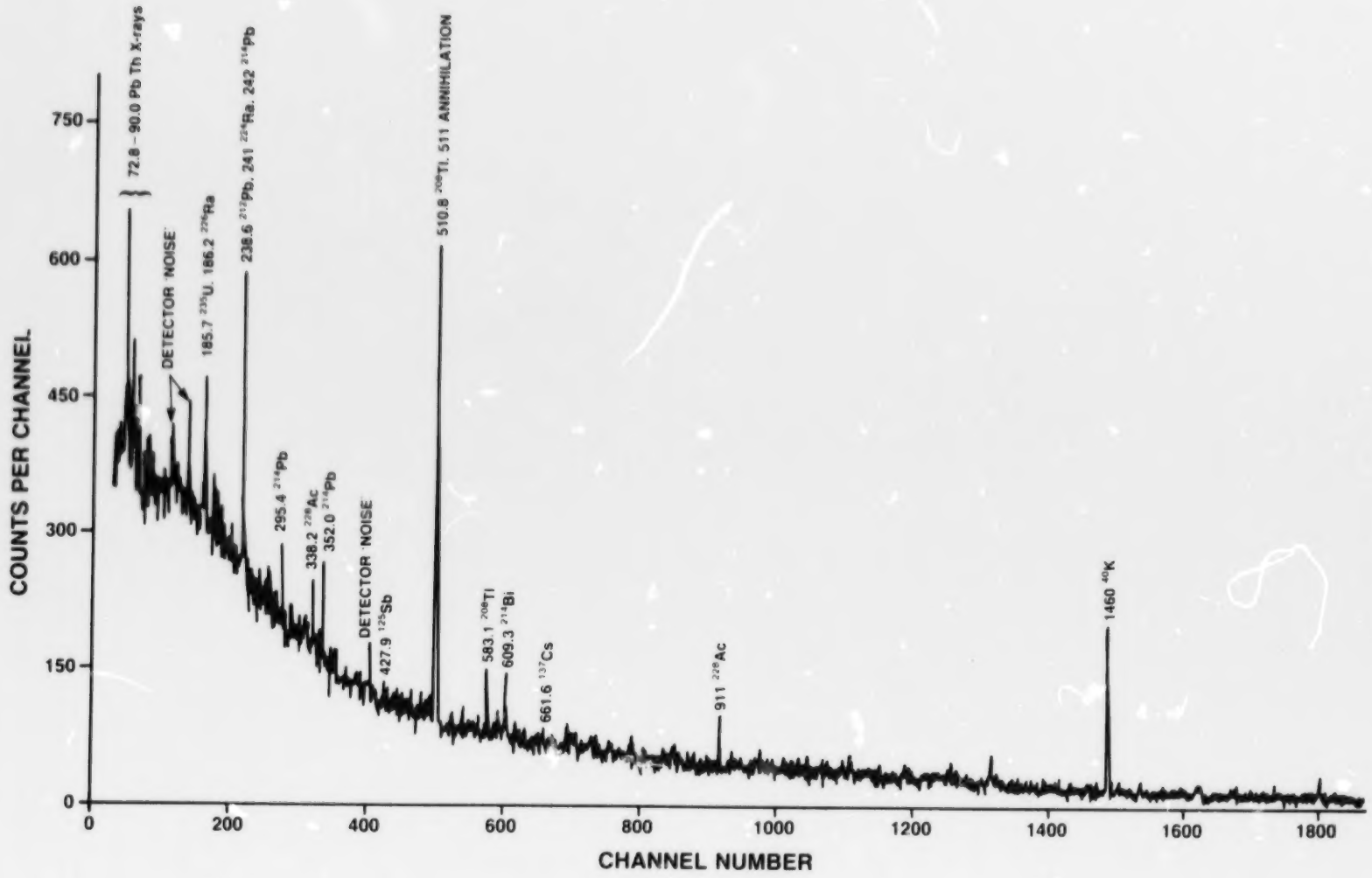


Figure 4. Gamma-ray spectrum of a 1984 Niagara River water sample showing prominent photopeaks with their energies (keV).

those from uranium mining and milling, and coal mining (Table 2).

The sampling stations monitored are listed in Table 3. The number of stations monitored varied during each year; they were 10, 11, 11, and 13 for the years 1981, 1982, 1983 and 1984, respectively. During 1981, the annual water composite samples were analyzed for radium-226 (Ra-226), tritium (H-3), and total uranium (U). In subsequent years, two more radionuclides, cesium-137 (Cs-137) and antimony-125 (Sb-125), were added. Limited resources prevented inclusion of Sr-90 in these measurements, although it is well recognized that of all the fallout radionuclides, Sr-90 provides the most radiation dose (Durham and Joshi, 1984).

The detailed analytical data for the annual composite water samples are presented in Tables A-1 to A-4 in the Appendix. Errors shown with individual measurements are the statistical errors of measurement including those in the background. All the available data for the monitoring years are summarized in Table 4. Herein the individual data are means of the four-year data with their standard deviations. To study short-term temporal variations, some samples from the Ontario locations were analyzed quarterly; the data for 1982 to 1984 are presented in Table 5.

For sediments, only two locations were sampled along the Ottawa River. The intersection of the Ottawa River at Bissett Creek is located upstream from the water intake/discharge for the nuclear power station (NPD), whereas the intersection of the Ottawa River at Petawawa is located below the AECL nuclear laboratories at Chalk River, Ontario. The former station was chosen to represent baseline (background) conditions in the Ottawa River, and the latter station should reflect the impact of discharges from the two nuclear facilities. The sediment data from the two Ottawa River locations in Ontario are presented in Table 6.

Table 3. Sampling Stations Monitored Each Year during Sampling Period, 1981 to 1984

Sampling location*	Year of monitoring			
	1981	1982	1983	1984
Surface Water Sampling				
1. Ranger Bight, Lab.		x	x	x
2. Annapolis River, N.S.	x	x	x	x
3. McAskill Brook, N.S.	x	x	x	x
4. Moose Creek, N.B.	x	x	x	x
5. Petitcodiac River, N.B.	x	x	x	x
6. Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	x	x	x	x
7. Niagara River at Fort Erie, Ont.			x	x
8. St. Lawrence River at Wolfe Island, Ont.	x	x	x	x
9. Souris River near Coulter, Man.	x	x	x	x
10. Red River, Man.			x	x
11. Saskatchewan River at Man.-Sask. Boundary	x	x		x
12. Poplar River East, Sask.	x	x		x
13. Baker Lake, N.W.T.	x	x	x	x
Sediment Sampling				
14. Ottawa River/Bissett Creek, Ont.		x		
15. Ottawa River/Petawawa, Ont.		x		

*Sampling locations are indicated in Figure 3.

Table 4. Average Radionuclide Concentration in Surface Waters, 1981 to 1984

Sampling location*	Average radionuclide concentration†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	Total U (μg/L)
1. Ranger Bight, Lab.	4.44±1.11	<13.69	<7.78	5.95±2.34	0.70±0.08
2. Annapolis River, N.S.	1.48±0.30	<3.97	<8.98	6.02±1.49	0.43±0.05
3. McAskill Brook, N.S.	1.48±0.60	<6.66	15.56±9.45	4.70±1.15	0.30±0.04
4. Moose Creek, N.B.	1.66±0.64	<3.39	<8.88	6.81±1.78	1.37±0.26
5. Petitcodiac River, N.B.	12.67±10.14	<4.44	<7.17	7.88±1.73	2.24±1.91
6. Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	2.19±0.86	0.70±0.32	<1.81	8.00±0.88	0.48±0.08
7. Niagara River at Fort Erie, Ont.	1.66±0.26	<1.00	1.05±0.40	5.12±2.06	0.28±0.17
8. St. Lawrence River at Wolfe Island, Ont.	1.43±0.53	1.52±0.33	<2.40	8.56±1.67	0.57±0.27
9. Souris River near Coulter, Man.	2.13±1.22	<4.46	<6.93	7.64±5.46	2.39±1.14
10. Red River, Man.	3.88±3.92	5.50±4.33	<7.52	<6.33	4.74±3.05
11. Saskatchewan River at Man.-Sask. Boundary	5.92±1.70	<4.63	<8.35	<9.92	0.99±0.07
12. Poplar River East, Sask.	7.03±0.37	<3.50	<7.24	<6.48	2.84±0.76
13 Baker Lake, N.W.T.	1.57±0.70	4.22±1.77	<10.19	12.24±4.68	0.16±0.08
Mean	3.66	–	–	–	1.35

*Sampling locations are indicated in Figure 3.
†The values reported for each radionuclide are means of the available data with their standard deviations.

Table 5. Quarterly Analyses of Surface Water Samples from Ontario

Year	Sampling location*		Radionuclide concentration†				
			Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	Total U (μg/L)
1982	Niagara River at Niagara-on-the-Lake	1Q‡	2.33±0.44	1.27±0.78	<1.81	6.70±2.37	0.40±0.02
		2Q	3.77±0.67	–	–	8.18±3.44	0.43±0.07
		3Q	1.74±0.07	0.52±0.18	0.37±0.33	12.28±3.44	0.54±0.08
		4Q	1.52±0.07	0.96±0.18	<0.30	7.55±1.52	0.65±0.10
		Mean	2.34±1.02	0.92±0.38	<1.81	8.68±2.48	0.50±0.11
	St. Lawrence River at Wolfe Island	1Q	0.74±0.37	2.04±0.81	<2.40	10.14±2.37	–
		2Q	1.48±0.74	2.74±0.81	2.04±1.78	9.47±3.66	0.40±0.66
		3Q	1.48±0.15	0.85±0.67	<1.70	10.32±3.44	2.11±0.32
		4Q	1.55±0.22	1.41±0.63	<1.33	11.84±1.52	0.42±0.06
		Mean	1.31±0.38	1.76±0.81	<2.40	10.44±1.00	0.98±0.98
1983	Niagara River at Niagara-on-the-Lake	1Q	0.63±0.04	0.28±0.25	<0.47	9.25±2.81	0.60±0.09
		2Q	1.11±0.07	<0.23	<0.61	<4.11	0.62±0.09
		3Q	2.22±0.07	0.36±0.23	1.16±0.77	9.69±2.81	0.60±0.09
		4Q	1.48±0.07	0.77±0.22	<0.74	6.03±2.37	0.50±0.08
		Mean	1.36±0.67	0.47±0.26	<1.16	8.32±2.00	0.58±0.05
	St. Lawrence River at Wolfe Island	1Q	1.18±0.15	<0.74	<1.50	8.62±2.81	0.50±0.08
		2Q	0.78±0.07	1.36±0.55	<1.12	<4.11	0.44±0.07
		3Q	0.93±0.07	1.45±0.57	<1.45	7.55±2.81	0.42±0.06
		4Q	1.48±0.11	1.05±0.76	<1.09	5.60±2.37	0.43±0.06
		Mean	1.09±0.31	1.29±0.21	<1.50	7.26±1.53	0.45±0.04
1984	Niagara River at Niagara-on-the-Lake	1Q	2.22±0.07	0.53±0.34	1.28±0.84	<2.07	0.42±0.06
		2Q	–	–	–	7.44±1.90	0.47±0.07
		3Q	1.85±0.07	<0.24	<0.30	5.99±1.90	0.42±0.06
		4Q	1.11±0.07	0.73±0.31	<0.58	7.56±1.97	0.48±0.07
		Mean	1.73±0.56	<0.73	<1.28	7.00±0.87	0.45±0.03
	Niagara River at Fort Erie	1Q	1.48±0.07	<0.29	<0.59	7.73±2.15	0.39±0.06
		2Q	1.48±0.07	<0.25	<0.77	4.81±1.89	0.50±0.08
		3Q	1.85±0.07	<0.34	<0.63	8.07±1.90	0.38±0.06
		4Q	1.11±0.04	0.50±0.29	<0.68	5.70±1.96	0.33±0.05
		Mean	1.48±0.30	<0.50	<0.77	6.58±1.58	0.40±0.07
	St. Lawrence River at Wolfe Island	1Q	1.11±0.07	<0.50	<1.17	7.66±2.15	0.50±0.08
		2Q	1.11±0.07	<0.48	<0.99	8.19±1.90	0.43±0.06
		3Q	1.11±0.07	1.01±0.50	<1.02	9.87±1.91	0.38±0.06
		4Q	1.11±0.07	<0.47	<1.16	6.16±1.97	0.43±0.06
		Mean	1.11±0.07	<1.01	<1.17	7.97±1.53	0.43±0.05

*Sampling locations are indicated in Figure 3.
†The errors reported with quarterly measurements are the statistical errors of the individual measurements including those in the background. Errors reported with quarterly means, however, are standard deviations.
‡Q represents quarter of the year.

Table 6. Radionuclide Concentration in Sediments of the Ottawa River, 1982

Sampling location*	Radionuclide concentration (Bq/g)†				
	Pb-210	Ra-226	Cs-137	Co-60 (1173 keV)	Co-60 (1332 keV)
Ottawa River/Bissett Creek, Ont.	0.56±0.02	0.04±0.01	0.39±0.01	<0.01	<0.01
Ottawa River/Petawawa, Ont.	0.57±0.02	0.04±0.01	1.32±0.01	0.21±0.01	0.21±0.01

*Sampling locations are indicated in Figure 3.
†The errors reported with each measurement are the statistical errors of the individual measurements including those in the background.

Generally, the radioactivity levels due to the presence of radionuclides, particularly Ra-226 and total U, in surface waters were slightly higher in samples collected during 1983 than in any other year (Appendix Tables A-1 to A-4, and Table 4). The levels of total uranium and Ra-226 were all above detection limit, whereas those for the fission products, especially Cs-137 and Sb-125, were mostly below the detection limit. As is evident from these data, the detection limits have been variable for different samples even for the same radionuclide. This is due to fluctuating levels of detector background which are known to affect the detection limits.

For total U, annual mean values for all the sampling locations varied from 0.90 to 2.05 μg/L. The lowest value, 0.10 μg/L, was from the Baker Lake location in 1982 and the highest value, 6.90 μg/L, was found in the Red River location in 1983. Annual means for Ra-226 varied from 2.13 to 4.60 mBq/L, the lowest being only 0.74 mBq/L in samples from McAskill Brook and Souris River in 1984, and the highest being 23.68 mBq/L recorded in the Petitcodiac River water in 1983. The highest levels of Cs-137, Sb-125 and tritium were 13.69 mBq/L at Ranger Bight (1982), 22.24 mBq/L at McAskill Brook (1983), and 17.46 Bq/L at Baker Lake (1981), respectively. Mean values for these radionuclides cannot be computed because most of the measurements were below the detection limit.

DISCUSSION

Nature of Radioactivity

Radioactivity in the environment results from the decay processes of individual radionuclides which may originate from natural and man-made sources. The U-238 and Th-232 decay chain radionuclides are the major source of naturally occurring radionuclides (Figs. 1 and 2). The man-made radionuclides primarily result from atmospheric fallout due to nuclear weapons testing and nuclear fuel cycle operations. Table 1 summarizes basic properties of some environmentally important radionuclides.

Unlike the International Joint Commission, which primarily has concentrated its efforts on the measurement of man-made radionuclides in the Great Lakes (Durham, 1974; Durham and Joshi, 1984; Great Lakes Water Quality Board, 1981; 1983), this program included the measurements of uranium and radium that originate primarily from natural sources. The concentrations of these radionuclides, however, may be enhanced due to man's activities. For example, the levels of radium in both water and sediments are known to be elevated in the vicinity of the Serpent River mouth due to uranium mining and milling in the Elliot Lake district upstream (Hart and McKee, 1985; Great Lakes Water Quality Board, 1983; Meyerhof, 1984). The Serpent River discharges through Serpent Harbour into Lake Huron.

Radionuclide Levels and Trends

Annual means over all sampling stations, wherever computable, and other data suggest that no trends are discernible for levels of radionuclides in surface waters (Appendix Tables A-1 to A-4). In general, no trends would be expected for the radionuclides of natural origin, i.e., total U and Ra-226, since the inputs from natural sources are usually constant. In contrast, the levels of man-made radionuclides (Cs-137, Sb-125 and tritium) were expected to decrease with time as had been found for the Great Lakes (Durham and Joshi, 1984; Tracy and Prantl, 1983). This decrease of fission products in the Great Lakes was primarily attributed to a reduced fallout input as a result of a Nuclear Treaty in 1963 banning the atmospheric testing of nuclear weapons. Some atmospheric testing has been carried out by the Peoples Republic of China and France, however, and the presence of radioactive fallout from these detonations in the Canadian aquatic ecosystems is well documented (Environmental Health Directorate, 1979; Roy *et al.*, 1981). Lack of any obvious trends in Cs-137, Sb-125 and H-3 concentrations may be because unlike most of the data for the Great Lakes studies, the present study encompasses the time period corresponding to minimal atmospheric nuclear explosions.

Cesium-137 and Antimony-125

As mentioned earlier, levels of most of the anthropogenic radionuclides were below the detection limits, especially for Cs-137 and Sb-125 (Table 4). In general, these data are in the same range as has been found for the Great Lakes in the early 1980s (Durham and Joshi, 1981, 1984; Great Lakes Water Quality Board 1981, 1983). Besides the reduced inputs from fallout, both Cs-137 and Sb-125 are quite reactive with the sediments. For example, Tracy and Prantl (1983) estimated that as much as 93% and 96% of the total Cs-137 activity was stored in the sediments of Lakes Superior and Huron, respectively. For Sb-125, the values ranged from 25% to 50%. Thus the levels of both Cs-137 and Sb-125 left in the aqueous phase would be rather small.

Tritium

The levels of tritium in the surface waters were generally above the detection limit (Appendix Tables A-1 to A-4, and Table 4) but essentially in the same range as has recently been found in the open waters of the Great Lakes

(Great Lakes Water Quality Board, 1983). Most of the tritium present in the aqueous environment has originated from nuclear weapons testing in the atmosphere (Health and Welfare Canada, 1979b; U.S. EPA, 1981). Again, since the banning of atmospheric testing in 1963, the tritium levels in the aquatic environment have decreased significantly. Kathren (1984) summarized the available data for the U.S. environmental waters and streams; his conclusion was that the levels in 1983 were an order of magnitude lower than those found in 1963.

Nuclear power generation may also release significant quantities of radionuclides to the immediate environments. Recently, available monitoring data were summarized by the Water Quality Branch (1985b) to compare the levels of radionuclides at Rolphton, which is upstream from the nuclear power generating station (NPD) and AECL nuclear laboratories at Chalk River, and at Pembroke, which is downstream from the two nuclear facilities. Means of the five-year data (1979 to 1983) at Pembroke revealed about a twofold increase in the levels of both Cs-137 and tritium, while those of Sr-90 were unaffected.

Uranium and Radium-226

Radioactivity from natural sources originates primarily from the uranium (U-238 and U-235) and thorium (Th-232) decay chain radionuclides. The average concentration of uranium in the earth's crust is about 1 μg/g (B.C. Royal Commission, 1980; Cothern and Lappenbusch, 1983), whereas that of thorium is somewhat higher. Hess *et al.* (1985) estimated an average Th/U activity ranging from 1.2 to 1.5; hence in the absence of enrichment or depletion processes, the levels of radionuclides from the Th-232 decay chain should be higher than those from the U-238 decay series. However, since thorium is quite insoluble, this radionuclide is expected to be found at very low concentrations in water.

The B.C. Royal Commission (1980) estimated that uranium concentration of most natural surface waters is of the order of about 0.1 μg/L (ppb). Surface waters in contact with uranium mineralization may have a concentration as high as 1 to 5 μg/L. In exceptional cases, the concentration may be as high as 50 μg/L when the water is in contact with uranium ore deposits.

As far as natural radioactivity in the aqueous environment is concerned, uranium and radium-226 are considered most important. Natural uranium is mainly composed of three isotopes: 99.27% of U-238, 0.72% of U-235, and 0.006% of U-234 (Cothern and Lappenbusch, 1983). At equilibrium, 1 μg of natural uranium has an activity of 24.8 mBq (0.67 pCi).

Average concentrations for total U and Ra-226 (four-year data) are shown in Table 4 along with other radionuclides. Average concentrations of total U have ranged from 0.16 μg/L in the Baker Lake location to 4.74 μg/L in the Red River waters, with an overall mean of 1.35 μg/L. This range is essentially within the range reported for waters in contact with uranium mineralization (1 to 5 μg/L, B.C. Royal Commission, 1980). Most of the surface waters drain either uranium or coal mineralization areas (Table 2); hence the ranges measured were expected. Yet the lowest levels measured in the Baker Lake location (0.16 μg/L) are rather unexpected because it does drain a uranium-rich basin. Coal mineralizations may contain up to 1000 μg/g of U (B.C. Royal Commission, 1980).

Cothern and Lappenbusch (1983) reviewed the literature relating to U occurrence in the natural waters of the world, especially in relation to that in the U.S.A. They quote a range from 0.02 μg/L in the St. Lawrence River (Canada) to 1.6 μg/L in the Ganges-Bramaputtra rivers in India. For surface waters in the United States, they give a value of 1 pCi/L (1.5 μg/L); this value is very close to that reported in Table 4 for Canadian surface waters, i.e. 1.35 μg/L.

For the Great Lakes, the uranium concentrations were somewhat lower, ranging only from 0.08 to 0.59 μg/L during 1981 and 1982 (Great Lakes Water Quality Board, 1983). The radiological water surveys carried out in British Columbia during 1979 to 1981, however, revealed quite high levels of uranium in some surface waters and even higher levels in ground/well waters (B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health, 1980, 1981). Generally, the high values approaching/exceeding 10 μg/L were recorded in uranium mineralization areas of Summerland and Nelson.

Temporal Variations

To study temporal variations, samples were analyzed quarterly, instead of annual composites; the data are presented in Table 5. The standard deviations reported alongside quarterly means are usually much less than 50% of the mean which is not high, considering that most levels of the measured radionuclides are barely above the detection limits.

For the radiological water surveys carried out in British Columbia, most samples were analyzed monthly (B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health, 1980). The reported data reveal cyclic variations; generally, February-April values for uranium were higher than those for May-June values (their Table 14). The

authors postulated that perhaps the water flow data that were not available would have explained such variations. For the short-term variations (daily-weekly), the authors concluded that "temporal compositional variations appear to be slight."

Thus, in view of the results available to date, the composite water samples being analyzed annually should be considered adequate at this time.

Radionuclide Content of Sediments

Sediments can serve as a potential sink/source for reactive pollutants including radionuclides. The magnitude of radioactivity in the aqueous and solid phases depends on the relative concentration of radionuclides in the respective phases; thus transference from one phase to another will occur depending upon concentration gradients (Tracy and Prantl, 1983). In flowing waters, the transport of radionuclides may take place in true solution, or by attachment to fine particulates (Martin and Meybeck, 1979). For the St. Lawrence River, Lupien and Grondin (1984) estimated that over 50% of the natural radionuclides measured in the aqueous phase were associated with or attached to the suspended solids.

Concentrations of radionuclides in the sediments are shown in Table 6. The levels of the naturally occurring Pb-210 and Ra-226 are essentially in the same range as reported for Lake Huron by Durham and Joshi (1980b). The Cs-137 levels also appear to be in the range measured for Lake Huron sediments; on closer inspection, however, the levels are higher in the Ottawa River sediments, since the measured levels for Lake Huron bottom sediments, in fact, represent nuclear weapons fallout accumulated over several years. The presence of Co-60 in Ottawa River sediments also is evidence of the occurrence of radionuclides from Chalk River in the study area.

The locations of the sampling stations are shown in Table 2. The Bissett Creek intersection of the Ottawa River is located upstream from two nuclear facilities, the nuclear power generating station (NPD) and AECL nuclear laboratories at Chalk River, Ontario. The other location, near Petawawa, is located downstream from the two nuclear facilities; hence the radionuclide concentrations differential should reveal the impact of the two nuclear facilities on sediment quality.

The data in Table 6 clearly reveal the impact of the two nuclear facilities on the radionuclide concentrations in the sediments. Cesium-137 and Co-60 were significantly elevated, whereas the levels of Pb-210 and Ra-226 were unaffected. The Ottawa River water quality data, in a review to assess the radiological impact of these two nuclear facilities, indicated that Cs-137 was elevated approximately twofold downstream at Pembroke compared with background levels at Rolphton (Water Quality Branch, 1985b). Thus, it appears that Cs-137 and perhaps Co-60 have migrated from the aqueous phase into the sediments. Contrary to this phenomenon, Tracy and Prantl (1983) concluded that Cs-137 is now re-entering water from the sediments in Lakes Superior and Huron due to reduced fallout input in the recent years. The sediment data from other surface water bodies surveyed are not available

Radiological Health Impacts

Drinking water can serve as a significant pathway for entry of radionuclides into biota and humans (Health and Welfare Canada, 1979b; U.S. EPA, 1981). Specifically, for uranium intake in the U.S.A., Cothern and Lappenbusch (1983) estimated that consumption of water contributed about 85% of the intake, whereas the remaining 15% was contributed by food.

Water Quality Guidelines

To protect the general public from excessive radiation exposure, revised guidelines for the consumption of drinking water were proposed by the Health and Welfare Canada in 1978; the recommended limits are shown in Table 7. The guidelines are based on a linear dose response relationship as recommended by the International Commission on Radiological Protection (ICRP) in publications 26 and 30 (ICRP, 1977, 1979). Maximum acceptable concentration (MAC) in drinking water has been derived which corresponds to 1% (0.5 mSv) of the ICRP recommended annual occupational dose equivalent limit for continuous exposure, while target concentration (TC) corresponds to only 10% (0.05 mSv) of the MAC. Radionuclide concentrations exceeding the MAC may be tolerated, provided that the duration of the increase is short and that the annual average concentration remains below this limit.

Table 7. Recommended Guidelines for Radionuclide Concentrations in Drinking Water

Radionuclide	Maximum acceptable concentration (Bq/L)	Target concentration (Bq/L)
Cesium-137	50	5
Iodine-131	10	1
Radium-226	1	0.1
Strontium-90	10	1
Tritium	40 000	4000
Uranium (mg/L)	0.02	≤0.001

Source: *Guidelines for Canadian Drinking Water Quality 1978*, Health and Welfare Canada (1979a).

Average radionuclide concentrations of both naturally occurring (total U and Ra-226) and man-made radionuclides

(Cs-137, Sb-125 and H-3) are shown in Table 4. As mentioned earlier, the levels of man-made radionuclides were generally quite low. The levels of both tritium and Cs-137 were much below the recommended target concentration of 4000 and 5 Bq/L, respectively. The levels of Sb-125 are quite low as well, but no recommended guidelines exist either for Canada or the United States (Health and Welfare Canada, 1979a; U.S. EPA, 1981).

All the levels of naturally occurring Ra-226 are below the target concentration of 100 mBq/L (Table 7). Similar conclusions were reached by Monenco Consultants Limited (1981), who surveyed 99 municipal drinking water supplies in Alberta; their Ra-226 concentrations ranged from 3.7 to 11.1 mBq/L (0.1 to 0.3 pCi/L). However, this is not the case for total uranium; five individual sampling stations and the overall average of 1.35 μg/L exceed the target concentration of 1.0 μg/L. In contrast, none of the Great Lakes concentrations of uranium exceeded the TC during 1981 and 1982 (Great Lakes Water Quality Board, 1983). However, some of the water samples in British Columbia even exceeded the MAC of 20 μg/L during certain monthly sampling periods (B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health, 1980; 1981).

Radiological Dose Commitment

Annual dose commitment[1] provides a quantitative assessment of the radiological hazard posed by the ingestion of waters containing radionuclides. In this study, doses were calculated using the data in Table 4. The methodology used was similar to that used by the International Joint Commission (Great Lakes Water Quality Board, 1983). For the purposes of calculation, a daily ingestion of 2.2 L (803 L/y) was assumed. The basis of dose conversion from radionuclide concentration is the annual limit of intake (ALI), which gives an effective dose equivalent of 5 rem (0.05 Sv). The ALI and concentration-to-dose conversion factors are shown in Appendix Table A-5. Except for total U, all other radionuclide data in Table 3 are in the SI units of radioactivity (becquerel). Therefore, uranium data were converted into radioactivity units assuming an equilibrium among the three isotopes—U-238, U-235, U-234—before dose calculation (Appendix Table A-6).

Radiological doses for the whole body are shown in Table 8. As is apparent, the overall committed effective dose equivalent from naturally occurring radionuclides (total U and Ra-226) was much higher than that from the artificially produced radionuclides (Cs-137, Sb-125 and H-3). Thus, dose contribution from individual radionuclides may be summarized as follows:

Total U > Ra-226 > Tritium > Cs-137 > Sb-125

The highest dose commitment would occur by the ingestion of water from the Red River, whereas the water from Baker Lake would give the lowest effective dose equivalent.

Unlike the Great Lakes waters, most of the dose commitment was from naturally occurring total U and Ra-226 (Durham and Joshi, 1984; Tracy and Prantl, 1983). In the former case, most of the dose was contributed by Cs-137 and Sr-90. In both cases, however, the dose commitment was less than the objective dose of 1 mrem (10 μSv) as stipulated in the Great Lakes Water Quality Agreement of 1978 (International Joint Commission, 1978).

[1]The basis for radiological dose commitment calculation is the annual limit of intake (ALI) as recommended in ICRP 30. The ALI is the quantity of a given radionuclide which, when injested or inhaled, will result in an uptake that will yield a committed dose equivalent of 5 rem (0.05 Sv) over the subsequent 50-year period.

Table 8. Whole Body Radiological Dose Commitment from the Use of Surface Water as a Source of Drinking Water

Sampling location*	Committed effective dose equivalent (μSv)				
	Ra-226	Cs-137	Sb-125	Tritium	Total U
1. Ranger Bight, Lab.	1.05	<0.15	<0.0041	0.0821	1.12
2. Annapolis River, N.S.	0 35	<0.04	<0.0047	0.0831	0.69
3. McAskill Brook, N.S.	0.35	<0.07	0.0082	0.0649	0.48
4. Moose Creek, N.B.	0.39	<0.04	<0.0047	0.0940	2.20
5. Petitcodiac River, N.B.	2.99	<0.05	<0.0039	0.1087	3.59
6. Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	0.52	<0.01	<0.0010	0.1104	0.77
7. Niagara River at Fort Erie, Ont.	0.39	<0.01	<0.0006	0.0707	0.45
8. St. Lawrence River at Wolfe Island, Ont.	0.34	0.02	<0.0013	0.1181	0.91
9. Souris River near Coulter, Man.	0.50	<0.05	<0.0037	0.0682	3.83
10. Red River, Man.	1.31	0.06	<0.0040	<0.0874	7.60
11. Saskatchewan River at Man.-Sask. Boundary	1.40	<0.05	<0.0044	<0.1369	1.59
12. Poplar River East, Sask.	1.66	<0.04	<0.0038	<0.0894	4.55
13. Baker Lake, N.W.T.	0.37	0.05	<0.0054	0.1689	0.26

*Sampling locations are indicated in Figure 3.

Committed effective dose equivalent from drinking surface waters may be compared with other concepts. Recently, the Atomic Energy Control Board (1985) proposed a *de minimis*, or trivial, dose concept, which states that certain contaminated materials be exempt from licensing if the annual dose commitment is less than 50 μSv. Incidently, this dose commitment is the same as that which would accrue from the continuous consumption of water at "target concentration" (Health and Welfare Canada, 1979a). Thus, these doses are much higher than those occurring from the consumption of surface waters (Table 8).

Radiological doses may be related to expected cancer risks. The Atomic Energy Control Board (1985) proposed an average risk conversion factor of 2×10^{-2} per sievert for both sexes and all ages. Using this conversion factor, the Red River water with the highest dose would give a risk of much less than 10^{-6} per year; this level of risk is generally considered insignificant (Health and Welfare Canada, 1979b; U.S. EPA, 1981).

U-238/Ra-226 Activity Ratios

Total uranium is essentially composed of uranium-238 (99.27% by weight). Radium-226 is a daughter product of the U-238 decay chain series. Uranium-238 and its daughter products are generally assumed to be in secular equilibrium; in weathered geologic materials, however, usually disequilibrium exists (B.C. Royal Commission, 1980). At secular equilibrium, the activities of both radionuclides should be equal; hence deviation from an activity ratio of unity will reveal the extent of disequilibrium and relative mobilities of the two radionuclides.

From total uranium (Table 4), activities of U-238 have been calculated (Appendix Table A-6); U-238 and Ra-226 activities, and their activity ratios are shown in Table 9. The activity ratios ranged from 1.25 in the Baker Lake to slightly over 10 in Moose Creek waters, with an overall average of 3.04. From Table 8, activity ratios for the Souris River and the Red River have been omitted; they were rather large, 13.72 and 14.94, respectively. These activity ratios simply suggest that U-238 has been much more mobile than Ra-226.

Veska (1983) studied the migration of radionuclides from a uranium waste rock pile near Bancroft, Ontario. He observed that U-238 had generally migrated much farther away from the source than Ra-226 (his Figure 5.23). Similar conclusions were reached by King *et al.* (1982) and Krishnaswami *et al.* (1982), who studied the relative mobilities of the two radionuclides.

In another study, Lupien and Grondin (1984) investigated the levels of natural radionuclides in the St. Lawrence River. From their Table 1, U-238/Ra-226 activity ratios were calculated; they ranged from 2.5 to 24.0. In addition, their K_d values for U-238 and Ra-226 (their Table 2) would also suggest that U-238 is much more mobile relative to Ra-226.

The mechanisms proposed for the relative mobilities of the two radionuclides are the adsorption of ionic radium onto solid surfaces mostly via ion exchange, while anionic complexes of uranium species with carbonate and hydroxyl ions are quite stable and mobile in the aqueous environment (King *et al.*, 1982; Krishnaswami *et al.*, 1982; Veska, 1983).

Regression analyses were performed to determine whether Ra-226 concentration in surface waters would be predictable from total uranium concentration. In these

Table 9. Average Uranium and Radium Concentrations, and U-238/Ra-226 Activity Ratios in Surface Waters, 1981 to 1984

Sampling location*	Radionuclide concentration (mBq/L)		U-238/Ra-226 activity ratio
	U-238†	Ra-226	
Ranger Bight, Lab.	8.56	4.44	1.93
Annapolis River, N.S.	5.26	1.48	3.55
McAskill Brook, N.S.	3.67	1.48	2.48
Moose Creek, N.B.	16.76	1.66	10.10
Petitcodiac River, N.B.	27.40	12.67	2.16
Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	5.87	2.19	2.68
Niagara River at Fort Erie, Ont.	3.42	1.66	2.06
St. Lawrence at Wolfe Island, Ont.	6.97	1.43	4.87
Saskatchewan River at Man.-Sask. Boundary	12.11	5.92	2.05
Poplar River East, Sask.	34.74	7.03	4.94
Baker Lake, N.W.T.	1.96	1.57	1.25
Mean	11.50	3.78	3.04

*Sampling locations are indicated in Figure 3.
†Concentration of U-238 was calculated from total uranium using a concentration factor of 0.9927.

analyses, total U was treated as an independent variable, while Ra-226 was considered a dependent variable. Appendix Figure A-1 shows a curvilinear relationship when all values were used; an insignificant correlation coefficient (r) value of only 0.542 was obtained. Yet when the two extreme values, i.e. Souris River and Red River, were excluded, a highly significant correlation coefficient of 0.776^{**} ($n = 11$, $P < 0.01$) was obtained (Appendix Fig. A-2). Nonetheless, when the data were plotted through the origin, a somewhat lower but highly significant correlation coefficient ($r = 0.761^{**}$) was obtained, as shown in Figure 5. Thus, it may be concluded that for most water samples, total U and Ra-226 levels are related, and the concentration of either one can be estimated from the concentration of the other radionuclide.

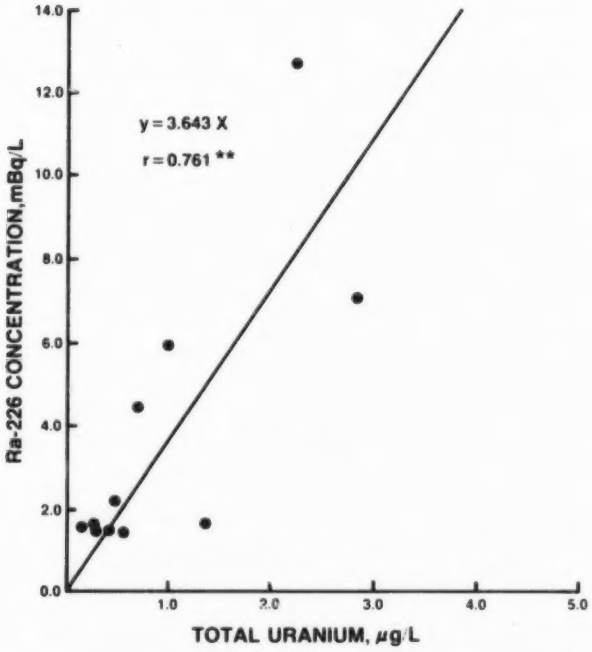


Figure 5. Relationship of total uranium and Ra-226 concentrations in surface waters when plotted through the origin (11 sampling stations; ** indicate $P < 0.01$).

CONCLUSIONS

The levels of radionuclides monitored in selected surface waters are generally low. No time trends were discernible over the monitoring period. Except for total U, at certain locations, all other radionuclide levels were much below the guideline target concentrations for drinking water. Radiological dose commitment from all surface waters was below the objective dose of 10 µSv (1 mrem), as stipulated in the Great Lakes Water Quality Agreement of 1978. Thus, it may be concluded that the present radionuclide concentrations in the surface waters pose no health hazard at this time.

Limited sediment data suggest that the two nuclear facilities—NPD and Chalk River Nuclear Laboratories—along the Ottawa River have increased the levels of radioactivity in the sediments downstream. More such data are needed from other locations.

Total U and Ra-226 activities suggest that the levels of these radionuclides are related in most surface waters. From their activity ratios, it was concluded that a disequilibrium between the two radionuclides exists, and that total U is much more mobile than Ra-226.

RECOMMENDATIONS FOR FUTURE MONITORING

The available radiological data relating to Canadian surface waters are sparse. The National Radionuclide Monitoring Program has provided a systematic approach to obtaining such data.

Objectives

The objectives of this report were to summarize the available radiological data, identify water quality trends, and assess the environmental significance of the results. The results presented in this report suggest that the program objectives have essentially been achieved.

The upper few millimetres of the sediments are quite reactive (Hart and McKee, 1985; Lerman, 1979; Tracy and Prantl, 1983); the radionuclides can be released into, or removed from, the water column above it. Biota (fish) serves as a foodchain pathway and can also be used as a monitoring tool under certain circumstances.

It is now recommended that the program should be expanded to include associated parameters such as sediments and biota (fish) in order to attain an overall picture of the aquatic ecosystem.

Sampling Locations

At present, up to 13 locations have been monitored for radiological water quality across six provinces and the Northwest Territories. In contrast, only two locations were monitored for sediment quality in Ontario during 1982. As mentioned earlier, most locations were selected because of suspected adverse impacts of uranium/coal mineralization, and/or nuclear fuel cycle operations.

Extensive uranium mineralizations exist in British Columbia, northern Saskatchewan and the Northwest Territories, which are not monitored adequately at present. Particularly in British Columbia, some of the waters surveyed in the areas of Summerland and Nelson have shown concentrations of uranium exceeding the "maximum acceptable concentration" of 20 μg/L. In northern Saskatchewan, very rich uranium deposits exist in the Athabasca Basin. Similarly, besides the Baker Lake area, several other uranium mineralizations exist in the Northwest Territories which are not monitored.

It is, therefore, recommended that the following new stations be added to the NRMP list:

(i) British Columbia:
  (a) Kettle River at Midway.
  (b) Okanagan River at Penticton.
  (c) Okanagan River below Oliver.
  (d) Thompson River at Spences Bridge.

(ii) Northwest Territories:
  (a) Slave River at Fitzgerald (Alberta).
  (b) Thelon River below outlet of Schultz Lake.
  (c) Anigaq River below Audra Lake.

(iii) Saskatchewan and Manitoba:
  (a) Beaver River above Beauval.
  (b) Wollaston Lake at Fond du Lac River and at Cochran River.
    Note: Data from these two stations will be obtained from the Province of Saskatchewan.
  (c) Sunshine Creek – to be finalized after discussions with Parks Canada.

(iv) Quebec:
  (a) Two stations: one above and one below the Nuclear Power Plant at Gentilly.
  (b) Lac David (southeast of Maniwaki).

Radionuclides and Laboratory Methodology

Radionuclides being analyzed at present are total U, Ra-226, Cs-137, Sb-125 and tritium. Health and Welfare Canada has guidelines for total U, Ra-226, I-131, Cs-137, Sr-90 and tritium; thus I-131 and Sr-90 have been omitted from our list.

Iodine-131 is contributed to surface waters mainly from atmospheric fallout due to nuclear weapons testing and nuclear power generation. This radionuclide has a short half-life of only eight days; hence I-131 poses no long-term hazard. In contrast, Sr-90 is one of the long-lived, health significant, radionuclides in both fallout and effluent discharges from nuclear reactors; its half-life is 28 years.

The Th-232 decay chain radionuclides have only been measured occasionally (Durham and Joshi, 1979b; Great Lakes Water Quality Board, 1983). Recently, it has been increasingly recognized that in spite of low concentrations in waters and sediments, this radionuclide and its daughter products can pose a significant health hazard. In a recent report to Environment Canada, Beak Consultants recommended that Th-232 and its daughter products be included in routine water quality monitoring programs (Hart and McKee, 1985).

Thus, it is recommended that Sr-90 be added to the list of radionuclides being analyzed presently, and that Sb-125 be deleted from the list because of its very low concentrations found in the water to date. It is further recommended that Th-232 and some other thorium isotopes (e.g. Th-230 and Th-228) be added to the list. Inclusion of gross α and β would also be desirable as a screening technique for natural and man-made radionuclides, respectively.

The Radionuclides Section of the National Water Research Institute, which analyzes all of the samples, is keeping up-to-date with the new methodology being developed for analyses. At present, methodologies exist for the analysis of recommended radionuclides, but additional instruments and personnel would be required to carry out the analyses.

Other Radionuclide Databases

Surface water quality data from the Ontario Ministry of the Environment (especially on the Serpent River system), Saskatchewan Department of the Environment, and Saskatchewan Research Council are available. It is recommended that these data be assessed, and pertinent data included in the Water Quality Branch database, NAQUADAT.

Special Problem Areas

Presently, the following areas are experiencing radiological water quality problems:

(i) Port Radium (Echo Bay)/Rayrock, N.W.T.: These two areas have inactive uranium tailings sites which originated from uranium mining and milling activities in the late 1950s. In 1981, Déné Indians claimed that enough radioactivity had leaked into the waterways such that the foodchain uptake of radionuclides had affected the health of the families living in the area. Health and Welfare Canada has investigated this problem, and preliminary results indicate that Sherman Lake levels for Ra-226 do exceed the "target concentration" for this radionuclide. Sherman Lake eventually discharges into the Marian River System.

(ii) Serpent River, Ontario: The Serpent River system drains the Elliot Lake district where extensive uranium mining and milling activities have been carried out since the early 1950s. The Serpent River discharges through Serpent Harbour into Lake Huron. Several studies have revealed that the levels of radium and other radionuclides in Serpent River water are elevated much above the background levels but are showing a downward trend.

Officials of Health and Welfare Canada, and of the Ontario Ministry of the Environment have expressed interest in Water Quality Branch involvement in the above-mentioned site-specific radiological water quality problems. It is, therefore, recommended that the Water Quality Branch participate in a joint venture with these two agencies.

(iii) U.S. nuclear water repository sites near the Canadian border: The U.S. Department of Energy has announced several sites for consideration to build a nuclear waste repository. Four of these sites in Minnesota are in the watershed of the Red River, and only one site in Maine is in the watershed of the St. Croix River.

It would be desirable to collect background information on these rivers. Already, there is a monitoring station in the Red River, and it is recommended that a station be established in the St. Croix River.

Multi-media Sampling

Sediments and biota (fish) are the other two important components of the aquatic ecosystems. It is, therefore, recommended that these parameters be included in this monitoring program at some selected locations.

Frequency of Sampling

At present, monthly water samples are collected and composited annually. A representative sample is then sent to NWRI for analysis for most sampling locations. To study temporal variations, some samples were analyzed quarterly instead of annually. The results suggest acceptable levels of variability.

Thus, it is recommended that the present scheme for annual composite analyses be followed as before. If an annual composite sample shows anomalous levels of radionuclides, then the samples from that location should be analyzed more frequently. Alternatively, such sampling locations may be sampled more intensively.

Non-radiological Parameters

Radionuclide concentrations in waters are known to be related to some other physico-chemical parameters. It is, therefore, recommended that parameters such as pH, specific conductance and total dissolved solids be measured as well.

Sample Collection Methodology

The present methodology followed for sample collection seems adequate; hence no changes are recommended.

Field Sampling Quality Assurance

A manual relating to field sampling quality assurance is in preparation. It is recommended that any pertinent changes ensuing from this compilation be conveyed to the field staff responsible for sampling.

Laboratory Techniques

Laboratory procedures identified in Chapter 2 are being followed rigorously for quality assurance. Thus the samples collected under the program are analyzed at NWRI using state-of-the-art equipment and techniques (Durham and Joshi, 1979b; Joshi, 1985; Joshi and Durham, 1976). Over the previous three years, emphasis has been placed on the development of reliable low-energy gamma-ray spectrometric techniques for direct (non-destructive) measurement of various radionuclides. At present, these techniques are undergoing rigorous evaluation using recently procured environmental radioactivity standard samples. Such in-house evaluation and participation in various intercomparison programs are an integral part of all data collected at NWRI. It is therefore recommended that these activities be maintained at the present level.

Interpretive Reporting

Radionuclide data are usually available in the middle of every calendar year for samples collected in the previous year. It is recommended that anomalies be reported annually and that a summary report, comparing the results with the results obtained in the previous years and the literature values, be prepared every three years.

Review of Program

It is recommended that the entire program be reviewed every three years.

Estimate of Resources

Presently, the water samples are collected by regional Water Quality Branch personnel and analyzed by the NWRI Radionuclides Section. As noted earlier, the latter function is an important and expensive aspect of the program. After the samples have been received at NWRI, it requires about 0.25 PY to record, prepare samples, analyze and then report the results to Water Quality Branch headquarters. In addition, it is estimated that chemicals, standard solutions, certified reference materials and instrument maintenance-associated expenditures cost about $5000 annually. Instrument procurement/replacement costs are not included in these estimates.

If the recommendations outlined in this report are followed, then the water samples alone are likely to double the present number. In addition, if some sediment and fish samples are also included, then the estimated costs would amount to 0.6 to 0.8 PY and an O&M of $20 000 to $25 000 annually.

Proposed Implementation

It is recommended that once the decisions are taken, the proposed changes be implemented in the beginning of fiscal year 1986/87.

ACKNOWLEDGMENTS

The National Radionuclides Monitoring Program has been in operation for four years (1981 to 1984). All of the water samples were collected by the regional personnel of the Water Quality Branch; the authors would like to thank them very much for their assistance. S.P. Thompson of the National Water Research Institute is thanked for her assistance in the analytical work, initially carried out under the supervision of R.W. Durham. The helpful suggestions and provision of materials by C. Barraud, P. Vasudev and R. Krauel of Environment Canada, and by D.P. Meyerhof, B.L. Tracy and E. Veska of Health and Welfare Canada are gratefully acknowledged.

REFERENCES

Atomic Energy Control Board. 1985. The Basis for Exempting the Disposal of Certain Radioactive Materials from Licensing. Consultative Document C-85, Atomic Energy Control Board, Ottawa, Canada.

B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health. 1980. Variations in the Uranium and Radioactivity Levels of Potable Surface and Ground Water in the Okanagan and West Kootenay Regions of British Columbia. Queen's Printer for British Columbia, Victoria, British Columbia.

B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health. 1981. Variations in Uranium and Radioactivity Levels in Surface and Ground Water at Selected Sites in British Columbia, April 1980 - March 1981. Queen's Printer for British Columbia, Victoria, British Columbia.

B.C. Royal Commission. 1980. Royal Commission of Inquiry into Uranium Mining. Commissioner's Report, Vol. 1, Queen's Printer for British Columbia, Victoria, British Columbia.

Cothern, R.C., and W.L. Lappenbusch. 1983. Occurrence of uranium in drinking water in the U.S. Health Phys., 45: 89-99.

Durham, R.W. 1974. Radionuclide levels in the Great Lakes Waters – 1973. Sci. Ser. No. 48, Inland Waters Directorate, Canada Centre for Inland Waters, Environment Canada, Burlington, Ontario.

Durham, R.W., and S.R. Joshi. 1979a. Radionuclide concentrations in two sewage treatment plants on western Lake Ontario, Canada. J. Radioanal. Chem., 54: 367-370.

Durham, R.W., and S.R. Joshi. 1979b. Determination of ^{229}Th, ^{230}Th, and ^{232}Th in environmental samples from uranium mining and milling operations. J. Radioanal. Chem., 52: 181-188.

Durham, R.W., and S.R. Joshi. 1980a. Investigation of Lake Ontario water quality near Port Granby radioactive waste management site. Water, Air Soil Pollut., 13: 17-26.

Durham, R.W., and S.R. Joshi. 1980b. Recent sedimentation rates, ^{210}Pb fluxes, and particle settling velocities in Lake Huron, Laurentian Great Lakes. Chem. Geol., 31: 53-66.

Durham, R.W., and S.R. Joshi. 1981. Concentrations of radionuclides in Lake Ontario water from measurements on water treatment plant sludges. Water Res., 15: 83-86.

Durham, R.W., and S.R. Joshi. 1984. Dose equivalent commitments from fallout radionuclides in the open waters of the Great Lakes, 1973-1981. Environ. Monitoring Assessment, 4: 405-417.

Environment Canada. 1983. Sampling for water quality. Water Quality Branch, Inland Waters Directorate, Environment Canada, Ottawa.

Environmental Health Directorate. 1979. Environmental Radioactivity in Canada, 1973-1976. 79-EHD-37, Health and Welfare Canada, Ottawa.

Erdtmann, G., and W. Soyka. 1979. *The Gamma Rays of the Radionuclides: Tables for Applied Gamma Ray Spectrometry*. Verlag Chemie, New York.

Great Lakes Water Quality Board. 1981. 1981 Report on Great Lakes Water Quality, Appendix – Great Lakes Surveillance. Report to the International Joint Commission, Windsor, Ontario.

Great Lakes Water Quality Board. 1983. 1983 Report on Great Lakes Water Quality, Appendix – Radioactivity. Report to the International Joint Commission, Windsor, Ontario.

Hart, D.R., and P.M. McKee. 1985. Study to assess the distribution of radionuclides in the aquatic ecosystem in the vicinity of the Serpent River mouth. Report prepared for Environment Canada on behalf of Beak Consultants Limited, Mississauga, Ontario.

Health and Welfare Canada. 1979a. *Guidelines for Canadian Drinking Water Quality 1978*. Prepared by the Federal-Provincial Working Group on Drinking Water of the Federal-Provincial Advisory Committee on Environmental and Occupational Health, Supply and Services Canada, Hull, Quebec.

Health and Welfare Canada. 1979b. *Guidelines for Canadian Drinking Water Quality 1978 – Supporting Documentation*. Prepared by the Federal-Provincial Working Group on Drinking Water of the Federal-Provincial Advisory Committee on Environmental and Occupational Health, Supply and Services Canada, Hull, Quebec.

Hess, C.T., J. Michel, T.R. Horton, H.M. Prichard, and W.A. Coniglio. 1985. The occurrence of radioactivity in public water supplies in the United States. Health Phys., 48: 553-586.

ICRP (International Commission on Radiological Protection). 1977. Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Annals of the ICRP, ICRP Publication 26, Pergamon Press, Oxford, U.K.

ICRP. 1979. Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. Annals of the ICRP, ICRP Publication 30, Vol. 2, No. 3/4, Pergamon Press, Oxford, U.K.

International Joint Commission. 1978. Great Lakes Water Quality Agreement of 1978. International Joint Commission, Windsor, Ontario.

Johnson, H., and M. Tutiah. 1985. Nuclear Information Series – Radiation is Part of Your Life. Atomic Energy of Canada Limited, Whiteshell Nuclear Research Establishment, Pinawa, Manitoba.

Johnson, J.R., and D.W. Dunford. 1983. Dose conversion factors for intakes of selected radionuclides by infants and adults. AECL-7919, Atomic Energy of Canada Limited, Chalk River, Ontario.

Joshi, S.R. 1984. ^{137}Cs, ^{226}Ra and total U in fish from Lakes Ontario, Erie, Huron, and Superior during 1976-1982. Water Pollut. Res. J. Can., 19: 110-119.

Joshi, S.R. 1985. Determination of thorium-228, thorium-230, and thorium-232 in sediments by anion exchange and nuclear spectrometry. Anal. Chem., 57: 1023-1026.

Joshi, S.R., and R.W. Durham. 1976. Determination of ^{210}Pb, ^{226}Ra and ^{137}Cs in sediments. Chem. Geol., 18: 155-160.

Kathren, R.L. 1984. *Radioactivity in the Environment: Sources, Distribution, and Surveillance*. Chapter 5, pp. 93-119, Harwood Academic Publishers, New York.

King, P.T., J. Michel, and W.S. Moore. 1982. Ground water geochemistry of ^{228}Ra, ^{226}Ra and ^{222}Rn. Geochim. Cosmochim. Acta, 46: 1173-1182.

Krishnaswami, S., W.C. Graustein, K.K. Turekian, and J.F. Dowd. 1982. Radium, thorium and radioactive lead isotopes in groundwaters: application to the in situ determination of adsorption-desorption rate constants and retardation factors. Water Resour. Res., 18: 1633-1675.

Lerman, A. 1979. *Geochemical Processes: Water and Sediment Environments*. John Wiley & Sons, Inc., New York.

Lupien, M.D., and D. Grondin. 1984. Natural radionuclides in the St. Lawrence River. Water Pollut. Res. J Can., 19: 120-128.

Martin, J.M. and M. Meybeck. 1979. Elemental mass-balance of material carried by major world rivers. Marine Chem., 7: 173-206.

Meyerhof, D.P. 1984. Revisions to the Guidelines for Canadian Drinking Water Quality Radiological Characteristics. Paper presented at the 5th Annual Conference of the Canadian Radiation Protection Association, Banff, Alberta.

Monenco Consultants Limited. 1981. Survey of naturally occurring radionuclides in Alberta municipal water supplies. Prepared for Municipal Engineering Branch, Alberta Environment, Edmonton, Alberta.

Platford, R.F., A.G. Bobba, and S.R. Joshi. 1984. The Port Granby radioactive waste management site. Water Pollut. Res. J. Can., 19: 90-96.

Roy, J.-C., J. Turcotte, J.-E. Côté, and P. Beaulieu. 1981. Fallout of ^{95}Co, ^{60}Co and ^{54}Mn in eastern Canada from nuclear weapons testing. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32: 423-428.

Tracy, B.L., and F.A. Prantl. 1983. 25 years of fission product input to Lakes Superior and Huron. Water Air Soil Pollut., 19: 15-27.

Veska, E. 1983. Origin and subsurface migration of radionuclides from waste rock at an abandoned uranium mine near Bancroft, Ontario. Ph.D. Thesis, University of Waterloo, Waterloo, Ontario.

U.S. EPA (U.S. Environmental Protection Agency). 1981. Radioactivity in Drinking Water. EPA 570/9-81-002, Office of Drinking Water, U.S. Environmental Protection Agency, Washington, D.C.

Water Quality Branch. 1980. Program for assessing radionuclides in the aquatic environment. Unpub. rep., Water Quality Branch, Inland Waters Directorate, Environment Canada, Ottawa.

Water Quality Branch. 1985a. The Business of the Water Quality Branch. Water Quality Branch, Inland Waters Directorate, Environment Canada, Ottawa.

Water Quality Branch. 1985b. Radioactivity in the Ottawa River. Unpublished rep., Water Quality Branch, Inland Waters Directorate, Environment Canada, Ottawa.

Whicker, E.W., and V. Schultz. 1982. *Radioecology: Nuclear Energy and the Environment*. Vol. I, Chapter 4, pp. 73-128, CRC Press, Inc., Boca Raton, Florida.

Appendix

Table A-1. Radionuclide Concentration in Surface Waters, 1981

Sampling location*	Radionuclide concentration†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	Total U (μg/L)
Annapolis River, N.S.	1.85±1.11	–	–	–	0.43±0.06
McAskill Brook, N.S.	1.48±0.37	–	–	3.88±3.22	0.29±0.04
Moose Creek, N.B.	1.48±0.37	–	–	5.81±1.74	1.60±0.20
Petitcodiac River, N.B.	6.66±0.74	–	–	7.33±2.37	1.50±0.20
Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	3.33±0.37	–	–	–	0.39±0.06
St. Lawrence River at Wolfe Island, Ont.	2.22±0.37	–	–	–	0.43±0.06
Saskatchewan River at Man.-Sask. Boundary	7.40±0.74	–	–	9.92±3.22	1.00±0.20
Souris River near Coulter, Man.	2.96±0.37	–	–	15.73±1.74	3.60±0.50
Poplar River East, Sask.	6.66±0.74	–	–	6.48±3.22	3.40±0.50
Baker Lake, N.W.T.	1.11±0.37	–	–	17.46±1.74	0.13±0.02
Mean	3.52	–	–	9.52	1.28

*Sampling locations are indicated in Figure 3.
†The errors reported with each measurement are the statistical errors of the individual measurements including those in the background.

Table A-2. Radionuclide Concentration in Surface Waters, 1982

Sampling location*	Radionuclide concentration†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	Total U (μg/L)
Ranger Bight, Lab.	4.44±0.37	13.69±1.85	<5.55	8.62±2.15	0.73
Annapolis River, N.S.	1.11±0.37	<1.85	<5.55	4.96±2.15	0.41
McAskill Brook, N.S.	1.48±0.37	6.66±1.48	8.88±4.07	<2.18	0.25
Moose Creek, N.B.	1.11±0.37	<1.85	8.88±4.44	6.03±2.15	1.43
Petitcodiac River, N.B.	18.50±0.74	4.44±1.85	<3.70	8.18±2.15	0.33
Saskatchewan River at Man.-Sask. Boundary	6.29±1.11	<2.98	<8.35	–	1.05
Souris River near Coulter, Man.	3.33±0.37	<1.11	5.92±4.07	4.96±1.92	0.93
Poplar River East, Sask.	7.03±0.74	<2.53	5.52±4.73	–	3.16
Baker Lake, N.W.T.	1.48±0.37	2.96±1.11	5.18±4.07	14.84±1.92	0.10
Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	2.34±1.02	0.92±0.38	<1.81	8.68±2.48	0.50±0.11
St. Lawrence River at Wolfe Island, Ont.	1.31±0.38	1.76±0.81	<2.40	10.44±1.00	0.98±0.98
Mean	4.40	–	–	–	0.90

*Sampling locations are indicated in Figure 3.
†The errors reported with each measurement are the statistical errors of the individual measurements including those in the background.

Table A-3. Radionuclide Concentration in Surface Waters, 1983

Sampling location*	Radionuclide concentration†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	Total U (μg/L)
Ranger Bight, Lab.	5.55±0.74	<3.48	<7.78	4.29±1.74	0.61±0.09
Annapolis River, N.S.	1.48±0.37	3.97±2.55	8.98±7.40	7.07±1.74	0.50±0.02
McAskill Brook, N.S.	2.22±0.74	<2.56	22.24±8.47	5.51±1.74	0.34±0.05
Moose Creek, N.B.	2.59±0.37	<3.39	<8.42	9.47±1.81	5.77±0.86
Petitcodiac River, N.B.	23.68±0.74	<2.57	<6.93	10.06±1.81	4.84±0.73
Souris River near Coulter, Man.	1.48±0.37	<2.86	<6.93	5.99±1.74	2.14±0.32
Red River, Man.	6.66±0.37	8.57±3.03	<7.52	6.33±1.74	6.90±1.03
Baker Lake, N.W.T.	2.59±0.37	<4.29	<7.39	9.10±1.81	0.29±0.04
Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	1.36±0.67	0.47±0.26	<1.16	8.32±2.00	0.58±0.05
Niagara River at Fort Erie, Ont.‡	1.85±0.11	1.00±0.32	1.33±0.91	3.66±2.37	0.16±0.08
St. Lawrence River at Wolfe Island, Ont.	3.09±0.31	1.29±0.21	<1.50	7.26±1.53	0.45±0.04
Mean	4.60	–	–	7.01	2.05

*Sampling locations are indicated in Figure 3.
†The errors reported with each measurement are the statistical errors of the individual measurements including those in the background.
‡The data are only for the 4th Quarter.

Table A-4. Radionuclide Concentration in Surface Waters, 1984

Sampling location*	Radionuclide concentration†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	Total U (μg/L)
Ranger Bight, Lab.	3.33±0.37	<2.58	<5.35	4.94±2.96	0.76±0.11
Annapolis River, N.S.	1.48±0.37	<2.28	<5.32	<2.96	0.39±0.06
McAskill Brook, N.S.	0.74±0.37	<2.30	<8.56	<2.96	0.32±0.05
Moose Creek, N.B.	1.48±0.37	<2.60	<6.99	5.93±2.96	1.09±0.16
Petitcodiac River, N.B.	1.85±0.37	<3.08	7.17±5.74	5.93±2.96	2.29±0.34
Souris River near Coulter, Man.	0.74±0.37	4.46±2.48	<4.62	3.87±2.96	2.88±0.43
Red River, Man.	1.11±0.37	2.44±2.19	<6.36	<2.96	2.58±0.39
Saskatchewan River at Man.-Sask. Boundary	4.07±0.37	<4.63	<7.84	<2.96	0.91±0.14
Poplar River East, Sask.	7.40±0.74	<3.50	<7.24	<2.96	1.97±0.30
Baker Lake, N.W.T.	1.11±0.74	5.47±5.01	<10.19	7.58±3.05	0.14±0.02
Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	1.73±0.56	<0.73	<1.28	7.00±0.87	0.45±0.03
Niagara River at Fort Erie, Ont.	1.48±0.30	<0.50	<0.77	6.58±1.58	0.40±0.07
St. Lawrence River at Wolfe Island, Ont.	1.11±0.07	<1.01	<1.17	7.97±1.53	0.43±0.05
Mean	2.13	–	–	–	1.12

*Sampling locations are indicated in Figure 3.
†The errors reported with each measurement are the statistical errors of the individual measurements including those in the background.

Table A-5. Whole Body Radiological Dose Commitment Factors Used in This Report

Radionuclide	Annual limit of intake (Bq)	Committed effective dose equivalent for 1 mBq/L concentration in water (μSv)
Radium-226	1.7×10^{5}	2.36×10^{-1}
Cesium-137	3.7×10^{6}	1.09×10^{-2}
Antimony-125	7.6×10^{7}	5.28×10^{-4}
Tritium	2.9×10^{9}	1.38×10^{-5}
Total uranium	6.4×10^{5}	6.27×10^{-2}

Note: Annual limit of intake values were taken from the IJC 1983 Report on Great Lakes Water Quality – Appendix on Radioactivity, except for natural (total) uranium for which the value given by Johnson and Dunford (1983) was used.

Table A-6. Whole Body Radiological Dose Commitment from Total Uranium in Surface Water When Used as a Source of Drinking Water

Sampling location*	Total U concentration		Committed effective dose equivalent (μSv)
	μg/L	mBq/L†	
1. Ranger Bight, Lab.	0.70	17.90	1.12
2. Annapolis River, N.S.	0.43	10.99	0.69
3. McAskill Brook, N.S.	0.30	7.67	0.48
4. Moose Creek, N.B.	1.37	35.03	2.20
5. Petitcodiac River, N.B.	2.24	57.27	3.59
6. Niagara River at Niagara-on-the-Lake, Ont.	0.48	12.27	0.77
7. Niagara River at Fort Erie, Ont.	0.28	7.16	0.45
8. St. Lawrence River at Wolfe Island, Ont.	0.57	14.57	0.91
9. Souris River near Coulter, Man.	2.39	61.10	3.83
10. Red River, Man.	4.74	121.19	7.60
11. Saskatchewan River at Man.-Sask. Boundary	0.99	25.31	1.59
12. Poplar River East, Sask.	2.84	72.61	4.55
13. Baker Lake, N.W.T.	0.16	4.09	0.26

*Sampling locations are indicated in Figure 3.
†An equilibrium among the uranium isotopes is assumed; 1 μg of total U = 25.567 mBq (0.691 pCi).

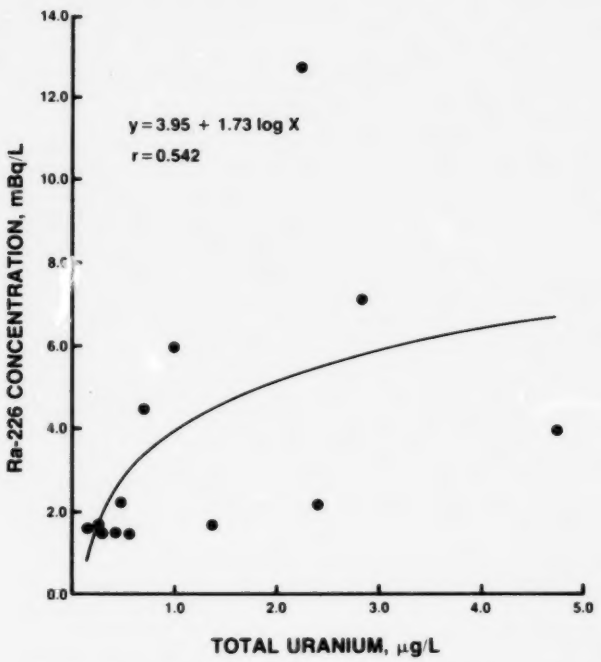


Figure A-1. Relationship of total uranium and Ra-226 concentrations in surface waters (13 sampling stations).

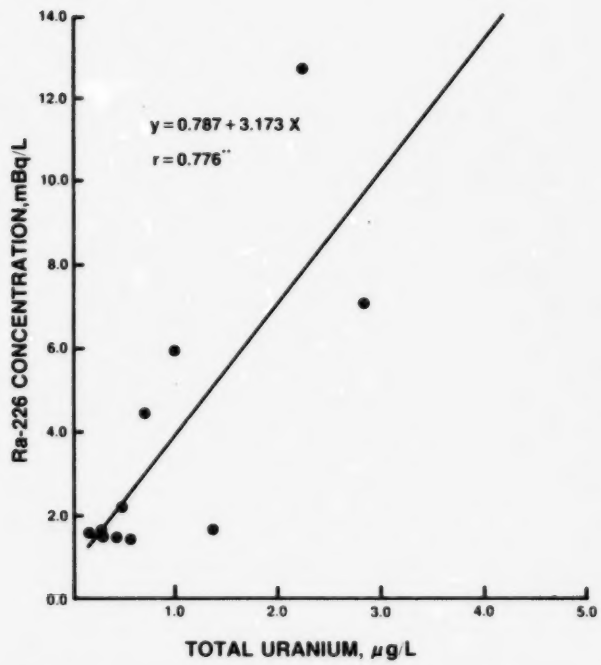
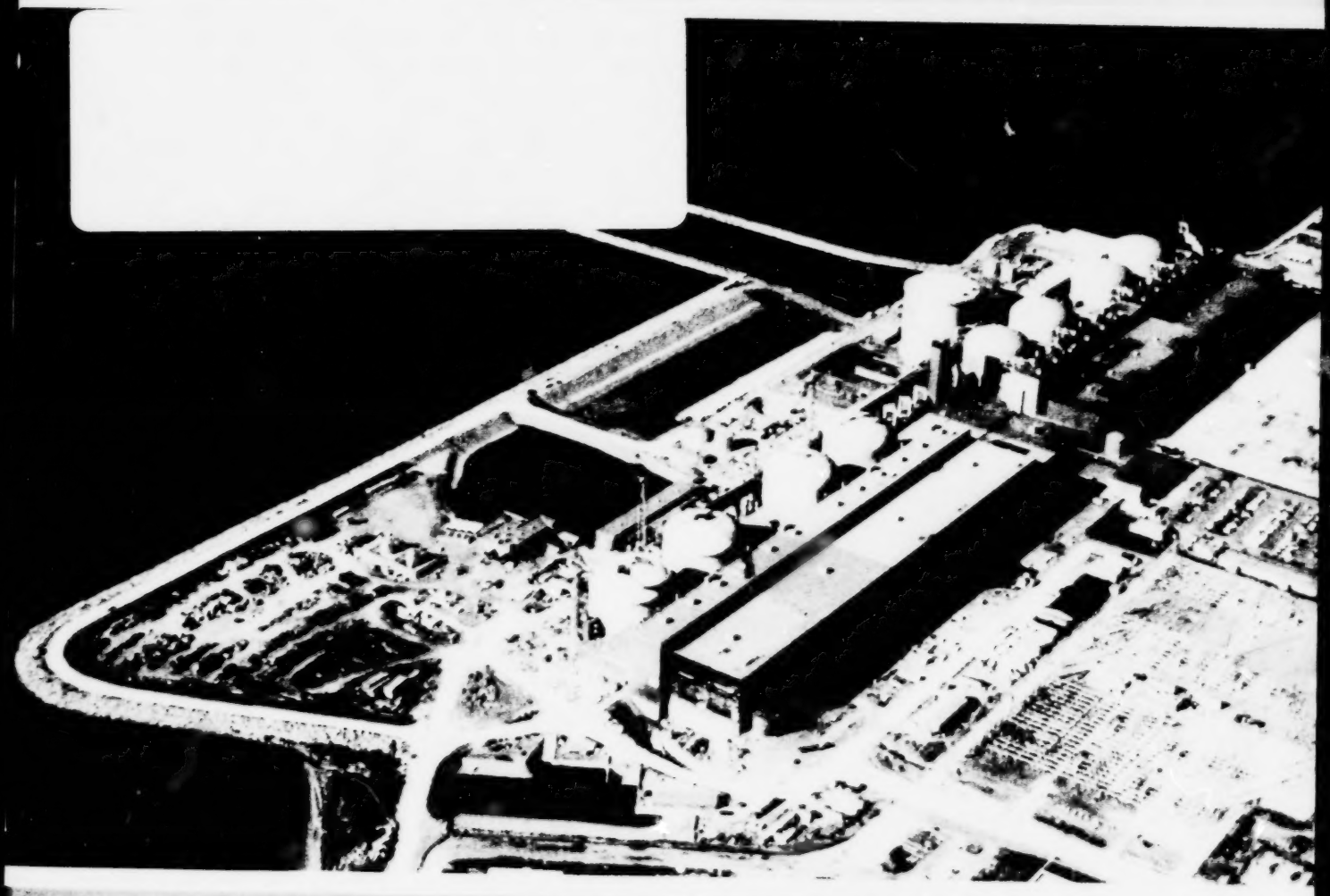


Figure A-2. Relationship of total uranium and Ra-226 concentrations in surface waters (11 sampling stations).

Environnement Canada
Environment Canada

Concentration des radionucléides dans certaines eaux de surface au Canada : rapport sur le programme national de contrôle des radionucléides, 1981-1984

A.S. Baweja, S.R. Joshi et A. Demayo



ÉTUDE N° 156, SÉRIE SCIENTIFIQUE

DIRECTION GÉNÉRALE DES EAUX INTÉRIEURES ET DES TERRES
DIRECTION DE LA QUALITÉ DES EAUX
OTTAWA, CANADA, 1987

(Available in English on request)

Canada

Photo de la couverture–

Centrale d'énergie nucléaire à Pickering, Ontario. (*Courtoisie : Énergie atomique du Canada Limitée.*)

Environnement Canada
Environment Canada

Concentration des radionucléides dans certaines eaux de surface au Canada : rapport sur le programme national de contrôle des radionucléides, 1981-1984

A.S. Baweja*, S.R. Joshi† et A. Demayo*

*Direction de la qualité des eaux
Environnement Canada
Ottawa (Ontario)

†Institut national de recherche sur les eaux
Environnement Canada
Burlington (Ontario)

ÉTUDE Nº 156, SÉRIE SCIENTIFIQUE

DIRECTION GÉNÉRALE DES EAUX INTÉRIEURES ET DES TERRES
DIRECTION DE LA QUALITÉ DES EAUX
OTTAWA, CANADA, 1987

(Available in English on request)

Publié avec l'autorisation
du ministre de l'Environnement

© Ministre des Approvisionnements et Services Canada 1987

N° de cat. En 36-502/156F

ISBN 0-662-94294-9

Table des matières

	Page
RÉSUMÉ	v
ABSTRACT	v
UNITÉS DE RADIOACTIVITÉ	vi
INTRODUCTION	1
Mandat de la Direction de la qualité des eaux en matière de contrôle	1
Origine des radionucléides	1
Impacts sur l'environnement et sur la santé	1
Contrôle des radionucléides	4
Objectifs	4
PROGRAMME DE COLLECTE DE DONNÉES	4
Points d'échantillonnage	4
Prélèvement	4
Méthodes de dosage	4
Échantillons d'eau	4
Échantillons de sédiments	8
Assurance de la qualité	8
RÉSULTATS	8
DISCUSSION	11
Nature de la radioactivité	11
Concentrations des radionucléides et tendances	11
Césium-137 et antimoine-125	11
Tritium	11
Uranium et radium-226	12
Variations avec le temps	12
Concentration des radionucléides dans les sédiments	13
Effets de la radioactivité sur la santé	13
Lignes directrices pour la qualité de l'eau	13
Dose radiologique engagée	14
Rapports des activités U-238/Ra-226	15
CONCLUSIONS	16
RECOMMANDATIONS CONCERNANT LES CONTRÔLES FUTURS	17
Objectifs	17
Points d'échantillonnage	17
Méthodes d'analyse des radionucléides	17
Autres bases de données sur les radionucléides	18
Régions présentant un problème particulier	18
Échantillonnage dans plusieurs milieux	18
Fréquence de prélèvement	19
Paramètres non radiologiques	19
Méthodes de prélèvement	19
Assurance de la qualité de l'échantillonnage sur le terrain	19
Techniques de laboratoire	19

Table des matières (suite)

Page

Rapport d'interprétation 19
Examen du programme 19
Coûts 19
Mise en application 19

REMERCIEMENTS 19

RÉFÉRENCES 20

ANNEXE 23

Tableaux

1. Propriétés fondamentales de certains radionucléides importants du point de vue environnemental 3
2. Stations d'échantillonnage contrôlées par la Direction de la qualité des eaux dans le cadre du Programme national de contrôle des radionucléides 6
3. Stations d'échantillonnage contrôlées chaque année pendant la période d'échantillonnage, 1981 à 1984 8
4. Concentration moyenne des radionucléides dans les eaux de surface, 1981 à 1984 9
5. Analyse trimestrielle d'échantillons d'eaux de surface en Ontario 10
6. Concentration des radionucléides dans les sédiments de la rivière des Outaouais, 1982 10
7. Lignes directrices pour les radionucléides dans l'eau potable 13
8. Dose radiologique engagée pour l'organisme entier après utilisation d'eaux de surface comme eau potable 15
9. Concentrations moyennes d'uranium et de radium et rapports des activités U-238/Ra-226 dans les eaux de surface, 1981 à 1984 15

Figures

Figure 1. Radionucléides de la série des chaînes de désintégration de l'uranium-238 avec périodes et modes de désintégration 2
Figure 2. Radionucléides de la série des chaînes de désintégration du thorium-232 avec périodes et modes de désintégration 2
Figure 3. Carte indiquant l'emplacement approximatif des stations d'échantillonnage contrôlées au Canada 5
Figure 4. Spectre gamma d'un échantillon d'eau prélevé en 1984 dans la rivière Niagara, avec les principaux pics et leurs énergies en keV 7
Figure 5. Relation des concentrations d'uranium total et de Ra-226 dans les eaux de surface, quand on fait passer la droite de régression par l'origine (11 stations d'échantillonnage) 16

Résumé

Le Programme national de contrôle des radionucléides a été mis en oeuvre pour évaluer la radioactivité des eaux de surface dans un nombre limité d'endroits un peu partout au Canada. Durant les quatre années de son application (de 1981 à 1984), on a prélevé mensuellement des échantillons d'eau à 13 endroits au plus et des échantillons de sédiments à deux endroits en 1982. La plupart des échantillons ont été combinés sur une base annuelle, mais certains l'ont été sur une base trimestrielle dans le but d'évaluer les variations avec le temps. On a dosé le U total, le Ra-226, le Cs-137, le Sb-125 et le tritium dans ces échantillons composites.

Les concentrations de radionucléides étaient généralement faibles, et on n'a discerné aucune variation avec le temps durant la période de contrôle trimestrielle. À l'exception du U total à certains endroits, les concentrations de tous les autres radionucléides étaient bien inférieures à la «concentration cible» stipulée dans les lignes directrices pour la qualité de l'eau potable au Canada. L'U total et le Ra-226 étaient les radionucléides qui contribuaient le plus à la dose engagée. Cette dose était inférieure à la dose visée de 10 μSv (1 mrem) stipulée dans l'Accord de 1978 sur la qualité de l'eau dans les Grands lacs. La contribution de chaque radionucléide à la dose cumulée diminuait dans l'ordre suivant : U total > Ra-226 > tritium > Cs-137 > Sb-125.

D'après des données limitées sur les sédiments, les installations nucléaires situées sur la rivière des Outaouais, c'est-à-dire la centrale nucléaire de Rolphton et les laboratoires nucléaires de l'Énergie atomique du Canada Limitée à Chalk River, sont responsables d'une augmentation des concentrations de Cs-137 et de Co-60; par contre, les concentrations de Pb-210 et de Ra-226 sont restées inchangées.

Les données sur la radioactivité de l'U total et du Ra-226 laissent supposer l'existence d'un déséquilibre; les concentrations de U total dans l'eau étaient de beaucoup supérieures à celles du Ra-226. Cependant, on a établi, pour la plupart des eaux de surface, une corrélation positive entre la concentration de ces deux radionucléides.

Abstract

The National Radionuclides Monitoring Program was initiated to assess the radiological status of surface waters at a limited number of sites across Canada. During four years of operation (1981 to 1984), up to 13 locations were sampled monthly for water and two for sediments in 1982. Most water samples were composited annually, but some were composited quarterly to assess the temporal variations. The composites were then analyzed for total U, Ra-226, Cs-137, Sb-125 and tritium.

Levels of the radionuclides monitored are generally low, and no time trends were discernible during the monitoring period. Temporal variations among the quarterly analyses are mostly insignificant. Except for total U at certain locations, all other radionuclide levels were much below the "target concentration" guidelines for Canadian drinking water. The main contribution to the radiological dose commitment was from total U and Ra-226. This dose was below the objective dose of 10 μSv (1 mrem) as stipulated in the Great Lakes Water Quality Agreement of 1978. Contributions from individual radionuclides to cumulative dose were in the order: total U > Ra-226 > tritium > Cs-137 > Sb-125.

The limited sediment data suggest that the nuclear facilities along the Ottawa River, which are the nuclear power generating station (NPD) at Rolphton and the Nuclear Laboratories of the Atomic Energy of Canada Limited at Chalk River, have increased the levels of Cs-137 and Co-60 but have not affected those of Pb-210 and Ra-226.

Total U and Ra-226 activities data suggest disequilibrium; the levels of total U in water were much higher than those of Ra-226. Concentrations of the two radionuclides, however, were positively correlated for most surface waters.

Unités de radioactivité

On a utilisé tout au long du présent rapport les unités de mesures du système international. Voici la définition des unités de base du système SI utilisées pour les mesures de radioactivité.

Becquerel (Bq) : Unité de mesure de la radioactivité correspondant à une désintégration (transformation) par seconde (dps).

Gray (Gy) : Unité de mesure de l'efficacité biologique de la dose de rayonnement, qui représente l'absorption d'un joule d'énergie par kilogramme de tissu.

Sievert (Sv) : Unité d'équivalent de dose de rayonnement; c'est le produit de la dose absorbée et d'un facteur de qualité (Q) dont la valeur dépend de la nature du rayonnement. Par exemple, Q est égal à 1 dans le cas des particules bêta et des rayons gamma; par contre, il est de 20 dans le cas des particules alpha (U.S. EPA, 1981). N représente tout autre facteur de modification; on lui attribue ordinairement une valeur unitaire.

UNITÉS ÉQUIVALENTES

1 curie (Ci) équivaut à 3.7×10^{10} dps ou Bq

1 rad équivaut à 100 ergs/g, soit 0.01 Gy

1 rem équivaut à 100 ergs/g $\times$ Q $\times$ N, soit 0.01 Sv

Concentration des radionucléides dans certaines eaux de surface au Canada : rapport sur le programme national de contrôle des radionucléides, 1981-1984

A.S. Baweja, S.R. Joshi et A. Demayo

INTRODUCTION

Mandat de la Direction de la qualité des eaux en matière de contrôle

Le Canada a la chance de posséder d'abondantes réserves d'eau de surface. Il y a lieu de maintenir des programmes de gestion judicieux, si l'on veut que tous les Canadiens puissent disposer, actuellement et à l'avenir, d'une eau de bonne qualité. C'est à la Direction de la qualité des eaux (DQE) qu'il incombe de fournir des données scientifiques et techniques et des conseils sur la qualité des eaux (Direction de la qualité des eaux, 1985a). La qualité d'une eau détermine dans quelle mesure elle convient comme eau destinée à servir à des fins récréatives, comme eau d'irrigation, comme eau d'abreuvement des animaux et comme eau industrielle. La gestion des produits toxiques, entre autres des radionucléides, en vue de déterminer ou d'éliminer leurs effets néfastes sur l'environnement au Canada, est actuellement l'une des principales priorités du ministère.

Origine des radionucléides

Les radionucléides présents dans l'environnement aquatique proviennent de sources naturelles et anthropiques (Whicker et Schultz, 1982). Ce sont les retombées consécutives à l'essai d'armes nucléaires dans l'atmosphère qui constituent la principale source à l'échelle globale de radionucléides d'origine anthropique. Cependant, les apports de cette source ont beaucoup diminué depuis la signature, en 1963, du traité interdisant les essais nucléaires dans l'atmosphère.

L'altération de minéraux radioactifs naturels contenant des radionucléides de la série de l'uranium et du thorium (figures 1 et 2) contribue généralement de faibles concentrations de ces radionucléides dans de vastes plans d'eau, comme en témoignent les données recueillies pour le lac Ontario (Durham et Joshi, 1980a) et le lac Huron (Durham et Joshi, 1980b). Néanmoins, on peut déceler des concentrations élevées de radionucléides naturels dans les eaux douces, en raison de la présence de riches gisements uranifères près de la surface (Commission royale de C.-B., 1980) ou d'activités faisant intervenir le cycle du combustible nucléaire (Hart et McKee, 1985; Platford et coll., 1984).

Divers radionucléides sont produits par l'interaction des rayons cosmiques avec les nucléides atmosphériques; cependant, la quantité de nucléides de cette origine dans l'environnement aquatique est plutôt faible. En général, les radionucléides atmosphériques atteignent l'environnement aquatique avec les précipitations et sous forme de retombées sèches. Les applications industrielles et médicales faisant couramment appel à des radionucléides contribuent très peu, semble-t-il, à la radioactivité des eaux (Durham et Joshi, 1979a).

Le tableau 1 donne les propriétés fondamentales de certains radionucléides importants du point de vue environnemental qui sont rejetés dans le milieu aquatique à diverses étapes des activités nucléaires. Un bon nombre d'entre eux sont aussi présents dans les retombées consécutives aux essais nucléaires dans l'atmosphère.

Impacts sur l'environnement et sur la santé

On dénombre plus de 200 radionucléides dans l'environnement. Le rayonnement ionisant (alpha, bêta et/ou gamma) émis par ces nucléides possède des propriétés physiques différentes et agit différemment avec la matière biologique; les particules alpha produisent des dommages très importants à cause de leur énergie élevée. Dans ce rapport, les résultats des mesures et des doses calculées de rayonnement sont exprimés en unités SI.

Un rayonnement ionisant excessif peut avoir des effets nocifs tant sur les êtres humains que sur la faune et la flore. Par exemple, dans le cas de l'humain, l'exposition de tout l'organisme à un rayonnement d'intensité supérieure à 10 sieverts (Sv) pendant une courte période peut être fatale (Johnson et Tutiah, 1985; U.S. EPA, 1981). Des doses plus faibles peuvent très bien ne pas être immédiatement mortelles, mais produire des effets nocifs après une période de latence, par exemple, induire un cancer ou provoquer des modifications génétiques. Ces effets nocifs

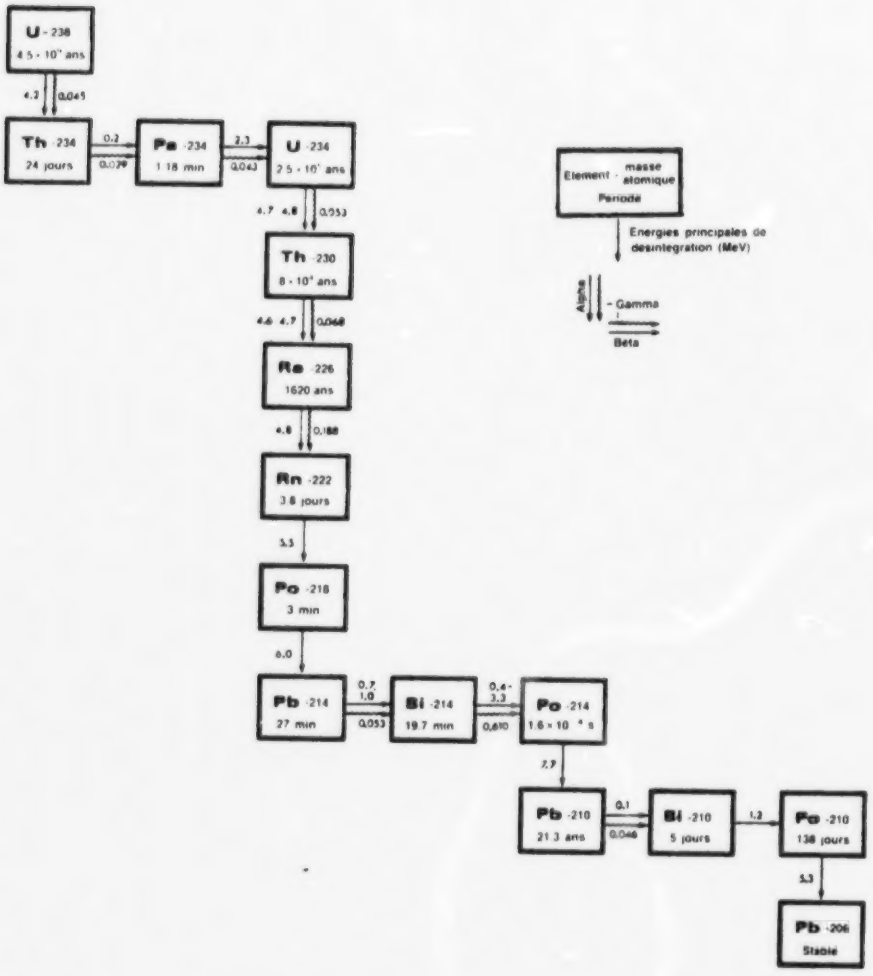


Figure 1. Radionucléides de la série des chaînes de désintégration de l'uranium-238 avec périodes et modes de désintégration (Source : Commission royale de C.-B., 1980).

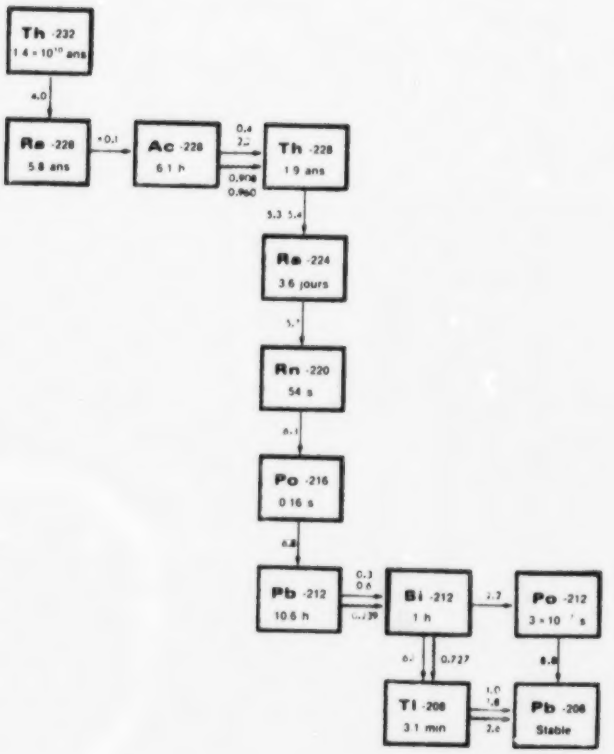


Figure 2. Radionucléides de la série des chaînes de désintégration du thorium-232 avec périodes et modes de désintégration (Source : Commission royale de C.-B., 1980).

Tableau 1. Propriétés fondamentales de certains radionucléides importants du point de vue environnemental*

Radionucléide	Période†	Rendement (%)	Mode de désintégration	Observations
		Produits de fission		
Sr-90	28.5 a	5.9	β	Chimie et métabolisme semblables à ceux du Ca
Ru-106	369 d	0.4	β	
Sb-125	2.77 a	0.03	β,γ	Également un produit d'activation
I-129	1.57×10^7 a	0.6	γ	Volatil
I-131	8.04 d	2.8	β,γ	Volatil; très utilisé en médecine nucléaire
Cs-134	2.06 a	0.03	β,γ	Semi-volatil; quantités plus importantes produites par des réactions d'absorption de neutrons
Cs-137	30.1 a	6.2	β,γ	Semi-volatil
Ce-144	284 d	5.4	β,γ	
		Produits d'activation		
H-3	12.33 a	–	β	Également produit par des neutrons cosmogéniques; rejeté en quantités importantes par les centrales nucléaires CANDU
C-14	5730 a	–	β	Également produit par des neutrons cosmogéniques
Mn-54	313 d	–	γ	Élément important sur le plan métabolique; plusieurs degrés d'oxydation
Fe-55	2.7 a	–	CE	Élément important sur le plan métabolique
Co-60	5.27 a	–	β,γ	
Sr-89	50.5 d	–	β	Chimie et métabolisme semblables à ceux du Ca
Pu-238	87.7 a	–	α	Élément extrêmement toxique sur le plan métabolique
Pu-239,Pu-240	2.4×10^4 a, 6.5×10^3 a	– –	α,α	Élément extrêmement toxique sur le plan métabolique
Am-241	432 a	–	α,γ	
		Présents dans la nature		
U(U-238,U-235)	4.5×10^9 a, 7.1×10^8 a	–	α,α	
Th(Th-232, Th-230,Th-228)	1.4×10^{10} a, 8.0×10^4 a, 1.9 a	–	α,α,α	
Ra-226	1620 a	–	α	Chimie et métabolisme semblables à ceux du Ca
Ra-228	5.8 a	–	β,γ	Chimie et métabolisme semblables à ceux du Ca
Pb-210	22.3 a	–	β,γ	
Po-210	138 d	–	α	

*Compilées à partir de l'ouvrage intitulé *The Gamma Rays of the Radionuclides : Tables for Applied Gamma Ray Spectrometry* par Erdtmann et Soyka (1979).
†a = an, d = jour.

sont généralement proportionnels à la dose reçue. Cependant, les scientifiques ne s'entendent pas sur l'effet de faibles doses, plus précisément sur l'existence d'un seuil limite (effet stochastique ou effet non stochastique) en dessous duquel il n'y avait aucun effet pathologique perceptible (CIPR, 1977, 1979; Johnson et Tutiah, 1985; U.S. EPA, 1981; Whicker et Schultz, 1982). En général, les organismes chargés de la radioprotection se basent sur l'hypothèse linéaire pour fixer des normes et des lignes directrices.

La consommation d'eau potable constitue chez l'homme la plus importante voie d'exposition aux radionucléides contenus dans l'eau (U.S. EPA, 1981). Une fois ingérés, les radionucléides migrent habituellement vers certains organes dits «organes critiques». Par exemple, le radium se dépose dans le tissu osseux et l'uranium dans les reins. La consommation de poissons qui accumulent des radionucléides est en importance la seconde voie d'exposition aux radionucléides présents dans le milieu aquatique (Joshi, 1984).

Au Canada, c'est la Commission de contrôle de l'énergie atomique (CCEA) qui fixe les doses limites. La Commission recommande que les personnes exposées professionnellement à un rayonnement ne reçoivent pas une dose annuelle supérieure à 50 mSv; dans le cas du grand public, cette dose est de 5 mSv par année. Ces doses ne comprennent pas la dose de radioactivité naturelle qui est d'environ 2 mSv par an au Canada (Johnson et Tutiah, 1985). Comme les effets du rayonnement ionisant sur le biote sont cumulatifs, la CCEA recommande de maintenir le degré d'exposition à la valeur raisonnablement la plus faible (Principe ALARA).

Contrôle des radionucléides

C'est à la Direction générale des eaux intérieures (DGEI) qu'il incombe de fournir des données et des renseignements sur la présence de produits toxiques dans l'environnement aquatique. On sait que les eaux de surface contiennent des radionucléides, mais les données dont on dispose à ce sujet sont plutôt limitées. D'autres organismes, comme les ministères provinciaux de l'environnement et Santé et Bien-être social Canada administrent des programmes de contrôle radiologiques destinés à évaluer les concentrations de radionucléides dans les eaux potables du Canada. Dans ces cas, la DGEI s'entend avec ces organismes pour qu'ils lui fournissent leurs données. La Direction de la qualité des eaux et l'Institut national de recherche sur les eaux (INRE) d'Environnement Canada, qui, depuis 1980, administrent conjointement le Programme national de contrôle des radionucléides, ne répètent pas les travaux faits par ces organismes.

Objectifs

Ce rapport a pour but de résumer les données actuellement disponibles, d'identifier les tendances relatives aux concentrations de radionucléides dans l'eau et d'évaluer l'importance environnementale des résultats obtenus jusqu'à présent. On recommandera d'apporter des modifications, s'il y a lieu, après analyse des résultats et examen des objectifs du Programme national de contrôle des radionucléides. Les résultats du programme de collecte de données portent sur la période allant de 1981 à 1984 inclusivement.

PROGRAMME DE COLLECTE DE DONNÉES

Points d'échantillonnage

On a prélevé des échantillons aux endroits où il y avait possibilité de déceler dans l'environnement aquatique des concentrations de radionucléides supérieures aux concentrations de fond, dues à des activités reliées au cycle du combustible nucléaire, à la présence de minéralisation en charbon ou en uranium ou à l'exploitation de gisements houillers ou uranifères. En outre, on a inclu dans le programme d'échantillonnage quelques stations de référence (Direction de la qualité des eaux, 1980). Ce programme n'englobe pas les régions susceptibles de constituer un problème et qui ont été convenablement contrôlées par d'autres organismes. Les points d'échantillonnage contrôlés par la Direction de la qualité des eaux sont mentionnés au tableau 2 et leur emplacement approximatif à la figure 3. En général, on a évité de prélever les échantillons à proximité de sources naturelles, car la plupart de ces endroits sont contrôlés convenablement par d'autres organismes.

Prélèvement

Les échantillons d'eau étaient prélevés par le personnel de la Direction de la qualité des eaux. On prélevait mensuellement dans des récipients en polyéthylène des échantillons de 4 L auxquels on ajoutait 8 mL d'acide chlorhydrique concentré comme agent de conservation. On combinait les 12 échantillons mensuels (de janvier à décembre), puis on expédiait une fois par année un échantillon représentatif de 5 L à l'INRE. Cependant, dans le cas du fleuve Saint-Laurent (à l'île Wolfe) et de la rivière Niagara (à Niagara-on-the-Lake), les échantillons ont été combinés et analysés sur une base trimestrielle pendant trois ans (de 1982 à 1984). En outre, les échantillons d'eau prélevés dans la rivière Niagara à Fort Érié ont été analysés trimestriellement en 1984. La DQE, région de l'Ontario, a également prélevé des échantillons de sédiments à deux endroits dans la rivière des Outaouais (en amont et en aval d'installations nucléaires), dans le cadre d'une étude sur les sédiments de fond de la rivière réalisée en 1982.

Méthodes de dosage

En général, on dosait le tritium, l'antimoine-125, le césium-137, le radium-226 et l'uranium total dans les échantillons d'eau. On a dosé le plomb-210, le césium-137, le radium-226 et le cobalt-60 dans les sédiments de la rivière des Outaouais. Les méthodes de dosage sont brièvement décrites ci-dessous.

Échantillons d'eau

On dosait le tritium dans les échantillons dès leur réception à l'INRE; pour ce faire, on ajoutait de 8 à 17 mL de PCS (mélange scintillateur Amersham) dans un flacon à scintillation en polyéthylène et on effectuait le comptage à 12 °C pendant 200 min dans un compteur à scintillateur liquide de type Searle Mark II. On étalonnait le compteur avec un étalon d'eau tritiée Amersham et on réglait la

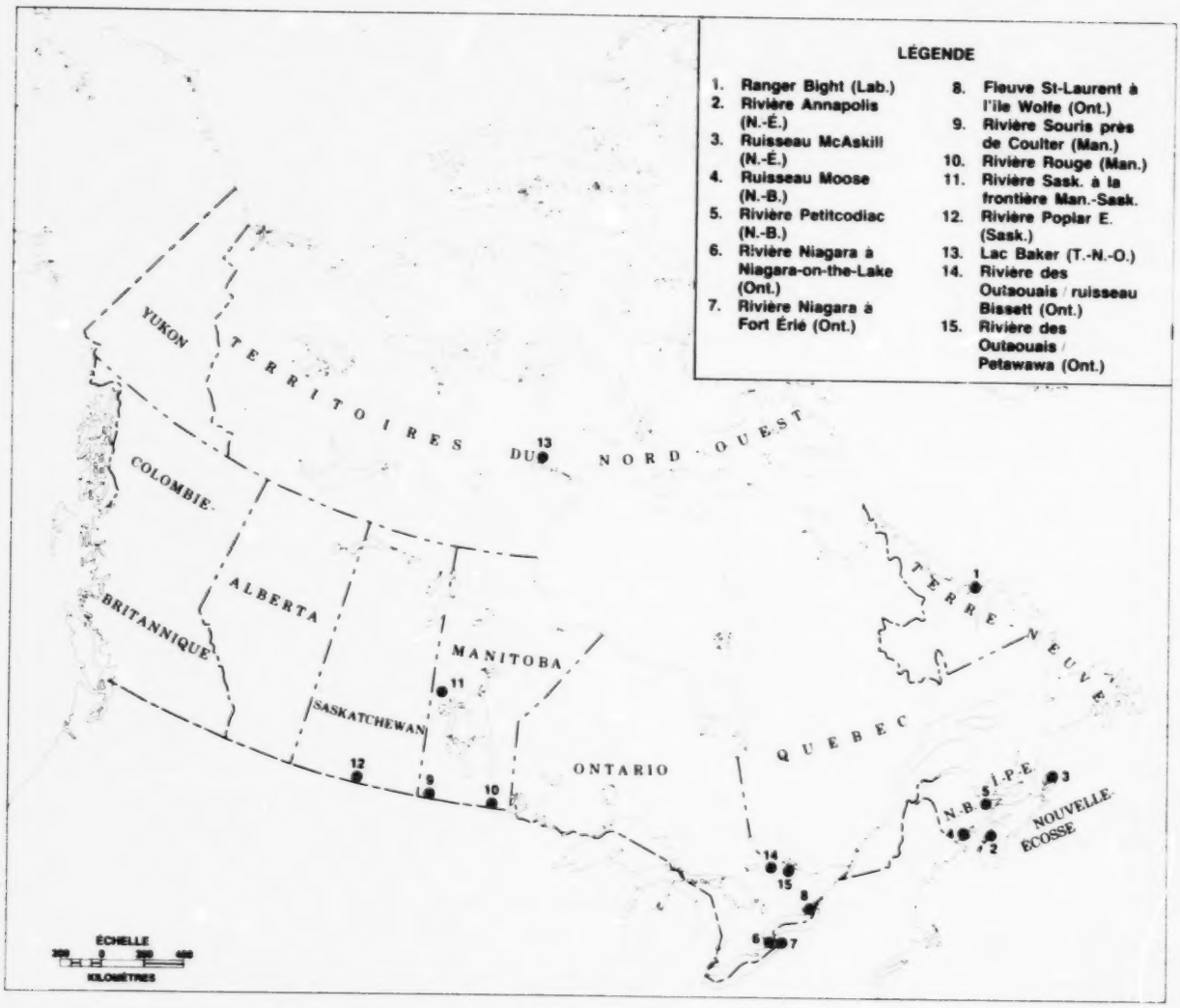


Figure 3. Carte indiquant l'emplacement approximatif des stations d'échantillonnage contrôlées au Canada.

fenêtre de l'analyseur d'amplitude de façon à ce qu'elle ne contienne que 50 % du centre du pic énergétique du H-3, afin de réduire au minimum la contribution de la radioactivité naturelle. On déterminait la contribution de la radioactivité naturelle avec un échantillon d'eau à teneur en tritium pratiquement nulle.

On dosait l'uranium dans des portions de 5 mL à l'aide d'un analyseur à fluorescence-laser Scintrex. On ajoutait des quantités étalons d'uranium au mélange eau/scintillateur en vue de déterminer les effets d'extinction. L'uranium dosé de cette façon est appelé «uranium total» dans ce rapport; il s'agit essentiellement de l'ensemble des isotopes de l'uranium naturel.

Des échantillons d'eau de 2 à 50 L ont été réduits par évaporation jusqu'à un volume final de 40 mL, afin de doser le Cs-137 et le Sb-125 qui sont des radionucléides émettant un rayonnement gamma (Durham, 1974; Durham et Joshi, 1984). On ajoutait de l'acide nitrique concentré en petites quantités aux échantillons lorsque le volume atteignait environ 200 mL, afin de détruire les matières organiques. Des expériences avec les radiotraceurs respectifs ont établi que cette méthode de pré-concentration permettrait d'obtenir des taux de récupération quantitatifs. Les spectres gamma des échantillons finals de 40 mL, contenus dans des bouteilles de polyéthylène, étaient mesurés avec deux détecteurs au germanium hyperpur refroidis à l'azote liquide, dans des enceintes revêtues de 10 cm de plomb. Les

Tableau 2. Stations d'échantillonnage contrôlées par la Direction de la qualité des eaux dans le cadre du Programme national de contrôle des radionucléides

Point d'échantillonnage*	Numéro NAQUADAT	Station d'échantillonnage: Longitude nord	Station d'échantillonnage: Latitude ouest	Motifs du contrôle
Prélèvement d'échantillons d'eaux de surface				
1. Ranger Bight (Lab.)	00NF 03NG 0004	55°04'54"	59°12'29"	Possibilités de minéralisation en uranium/exploration d'un gisement uranifère
2. Rivière Annapolis (N.-É.)	00NS 01DC 0001	44°57'14"	65°00'10"	Station de référence
3. Ruisseau McAskill (N.-É.)	00NS 01FJ 0021	46°09'06"	59°57'47"	Minéralisation en charbon/exploitation d'un gisement houiller
4. Ruisseau Moose (N.-B.)	02NB 01AQ 0001	45°07'04"	66°22'44"	Centrale nucléaire
5. Rivière Petitcodiac (N.-B.)	02NB 01BU 0002	46°04'28"	64°47'03"	Installation de montage d'éléments combustibles en uranium
6. Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	000N 02HA 0019	43°15'20"	79°03'20"	Aires de décharge de déchets industriels; possibilité de lessivage de radionucléides jusque dans la rivière
7. Rivière Niagara à Fort Érié (Ont.)	–	42°52'00"	78°55'00"	Résidus provenant de l'installation de retraitement du combustible nucléaire située à West Valley (New York)
8. Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	000N 02MA 0030	44°12'00"	76°13'59"	Activités reliées au secteur du nucléaire
9. Rivière Souris près de Coulter (Man.)	00MA 05NF 0001	49°05'27"	100°56'51"	Exploitation potentielle d'une mine de charbon
10. Rivière Rouge (Man.)	00MA 05OC 0001	49°00'29"	97°12'38"	Activités industrielles
11. Rivière Sask. à la frontière Man.–Sask.	00MA 05KH 0001	53°50'30"	101°20'03"	Écoulement dans la rivière d'eaux provenant de plusieurs sillons houillers et de centrales thermiques
12. Rivière Poplar E. (Sask.)	00SA 11AE 0008	49°00'00"	105°24'33"	Région de charbonnage
13. Lac Baker (T.N.-O.)	01NW 06MA 0001	64°19'09"	96°01'49"	Minéralisation en uranium/exploitation d'un gisement uranifère
Prélèvement d'échantillons de sédiments				
14. Rivière des Outaouais/ruisseau Bissett (Ont.)	–	46°10'00"	78°05'00"	Station de référence
15. Rivière des Outaouais/Petawawa (Ont.)	–	45°52'00"	77°17'00"	Déversement d'effluents provenant d'une centrale nucléaire et de laboratoires nucléaires (CRNL)

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.

détecteurs, disposés de façon coaxiale, étaient couplés à un spectromètre nucléaire Nuclear Data 6620, régié pour compter pendant 2.5×10^5 s avec 2048 canaux de données spectrales, à 1 keV par canal pour chaque détecteur. Les détecteurs ont été étalonnés en utilisant des radionucléides de Amersham Canada dans les mêmes échantillons de 40 mL et avec la même géométrie. Les taux de comptage des pics ont été convertis en taux de désintégration à partir des données sur l'efficacité des détecteurs et des probabilités d'émission gamma des radionucléides. La figure 4 montre le spectre gamma caractéristique obtenu pour un échantillon d'eau prélevé dans la rivière Niagara en 1984.

On a déterminé les concentrations de Ra-226 dans les échantillons d'eau en utilisant la technique classique d'émanation de radon décrite ailleurs par Durham et Joshi (1980a), sauf que l'on a remplacé l'étape du $Ba/RaSO_4$ par une dilution directe de l'échantillon de 40 mL ci-dessus jusqu'au volume désiré avec de l'eau désionisée doublement distillée. Le dosage du Ra-226 par spectrométrie gamma en utilisant les émissions à 186 keV ou à 352 keV n'a pas donné de résultats satisfaisants.

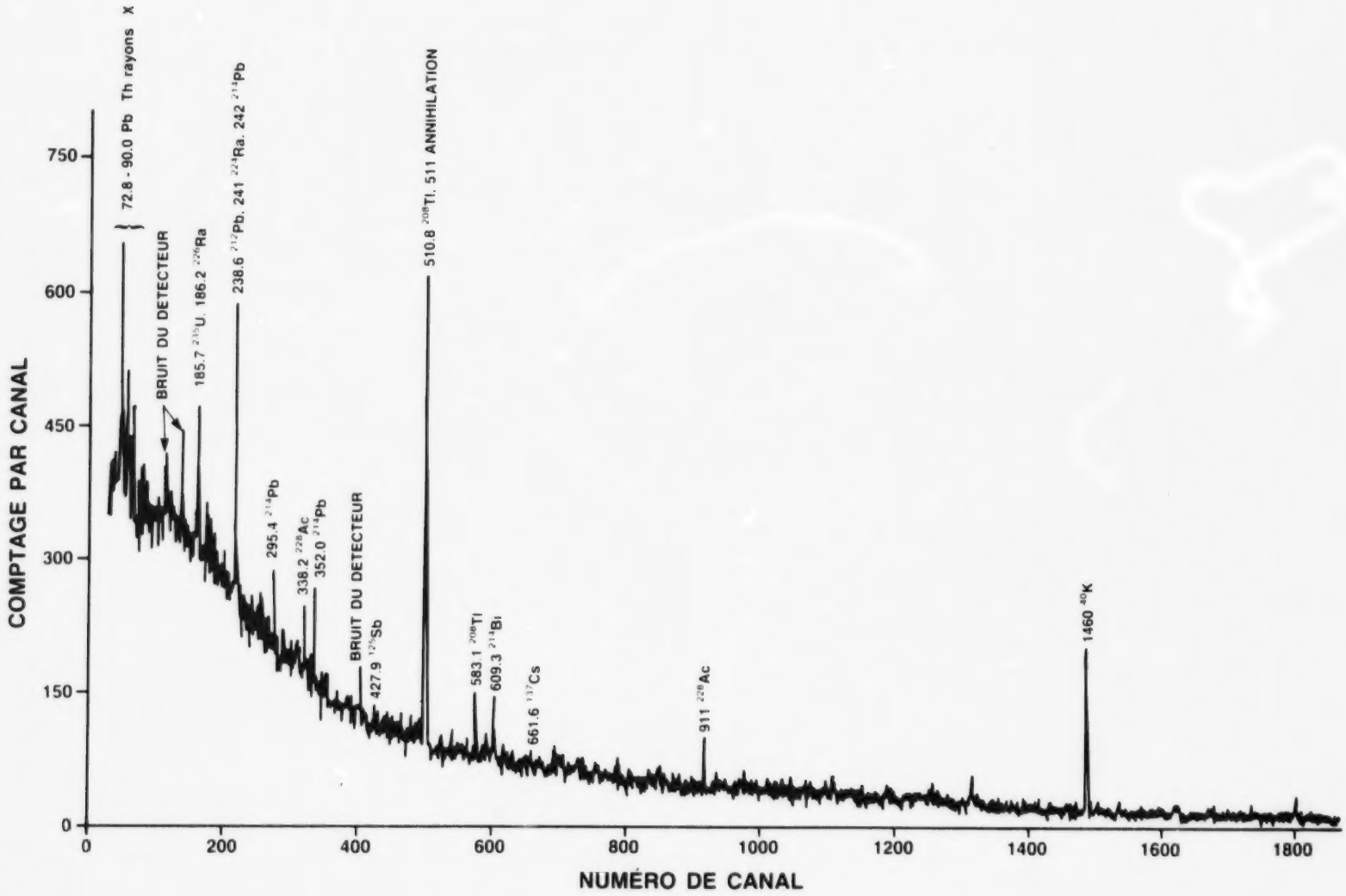


Figure 4. Spectre gamma d'un échantillon d'eau prélevé en 1984 dans la rivière Niagara, avec les principaux pics et leurs énergies (keV).

Échantillons de sédiments

Le dosage du Pb-210, du Ra-226, du Cs-137 et du Co-60 dans les deux échantillons de sédiments de la rivière des Outaouais a aussi été effectué par spectrométrie gamma. Les teneurs en Pb-210 et en Ra-226 des échantillons ont été mesurées avec des détecteurs intrinsèques au germanium en configuration plane, en utilisant les pics à 46.5 keV (Pb-210) et à 186 et 352 keV (Ra-226). On a calculé les concentrations du Cs-137 et du Co-60 à partir des taux de comptage mesurés avec un détecteur intrinsèque au germanium en configuration coaxiale, en utilisant les pics à 662 keV (Cs-137) et à 1173 et 1332 keV (Co-60). Des expériences utilisant des échantillons recouverts d'une couche d'époxy ont révélé que l'émanation de Rn-222 (et la modification consécutive de géométrie) à partir d'échantillons non recouverts d'époxy, contenus dans les flacons de comptage standard, est négligeable; on peut donc utiliser le pic à 352 keV pour doser le Ra-226 dans des échantillons solides. En outre, les résultats en utilisant le pic à 186 keV étaient identiques à ceux obtenus avec le pic à 352 keV. L'efficacité des détecteurs a été déterminée à quatre épaisseurs différentes de la manière décrite par Joshi (1985).

Tableau 3. Stations d'échantillonnage contrôlées chaque année pendant la période d'échantillonnage, 1981 à 1984

Point d'échantillonnage*	Année de contrôle			
	1981	1982	1983	1984
Prélèvement d'échantillons d'eaux de surface				
1. Ranger Bight (Lab.)		x	x	x
2. Rivière Annapolis (N.-É.)	x	x	x	x
3. Ruisseau McAskill (N.-É.)	x	x	x	x
4. Ruisseau Moose (N.-B.)	x	x	x	x
5. Rivière Petitcodiac (N.-B.)	x	x	x	x
6. Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	x	x	x	x
7. Rivière Niagara à Fort Érié (Ont.)			x	x
8. Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	x	x	x	x
9. Rivière Souris près de Coulter (Man.)	x	x	x	x
10. Rivière Rouge (Man.)			x	x
11. Rivière Sask. à la frontière Man.–Sask.	x	x		x
12. Rivière Poplar E. (Sask.)	x	x		x
13. Lac Baker (T.N.-O.)	x	x	x	x
Prélèvement d'échantillons de sédiments				
14. Rivière des Outaouais/ruisseau Bissett (Ont.)		x		
15. Rivière des Outaouais/Petawawa (Ont.)		x		

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.

Assurance de la qualité

Le contrôle/assurance de la qualité constitue un facteur important si l'on veut obtenir des données fiables pouvant être interprétées de façon significative. Dans le cas de ce programme particulier, les personnes travaillant sur le terrain ont suivi les méthodes générales proposées dans le manuel intitulé «Échantillonnage pour la qualité de l'eau» (Environnement Canada, 1983) pour prélever et expédier les échantillons. Pour ce qui est de la conservation des échantillons, le personnel avait reçu une formation appropriée.

La qualité des données analytiques a été évaluée régulièrement grâce à la participation continue à des programmes d'intercomparaison organisés par l'Environmental Protection Agency des É.-U. et à la participation sélective à des programmes semblables organisés par l'Agence internationale de l'énergie atomique. Le contrôle interne de la qualité a été réalisé à l'aide de matériaux de référence authentifiés fournis par le CANMET - EMR (Centre canadien de la technologie des minéraux et de l'énergie – Énergie, Mines et Ressources Canada), le National Bureau of Standards des É.-U., l'Environmental Protection Agency des É.-U. et l'Agence internationale de l'énergie atomique.

RÉSULTATS

De 1981 à 1984, on a déterminé la concentration des radionucléides dans certaines eaux de surface au Canada, dans le cadre du Programme national de contrôle des radionucléides. Le choix des stations d'échantillonnage reposait essentiellement sur l'impact possible sur la qualité de l'eau de la radioactivité due à la présence d'une minéralisation en uranium ou en charbon, à des émissions/rejets de centrales nucléaires, à des déversements d'effluents industriels, y compris ceux provenant de l'extraction et de la préparation de minerais uranifères, et à l'exploitation de la houille (tableau 2).

Les endroits contrôlés sont mentionnés au tableau 3. Leur nombre variait chaque année; il y en avait 10, 11, 11 et 13 en 1981, 1982, 1983 et 1984, respectivement. En 1981, on a dosé le radium-226 (Ra-226), le tritium (H-3) et l'uranium total (U) dans des échantillons d'eau combinés sur une base annuelle. Au cours des années suivantes, on a dosé deux autres radionucléides, soit le césium-137 (Cs-137) et l'antimoine-125 (Sb-125). Les ressources limitées dont on disposait ne nous ont pas permis d'inclure le Sr-90 à cette liste, même s'il n'y a aucun doute que, de tous les

radionucléides présents dans les retombées le strontium-90 est celui qui fournit la plus importante dose de rayonnement (Durham et Joshi, 1984).

Les données analytiques détaillées obtenues avec des échantillons d'eau combinés sur une base annuelle sont présentées aux tableaux A-1 à A-4 dans l'annexe. Les erreurs indiquées avec les mesures individuelles sont les erreurs statistiques de mesure, y compris celles pour la concentration de fond. Toutes les données recueillies au cours des quatre années sont résumées au tableau 4. Ces données sont les moyennes sur quatre ans et sont accompagnées de leur écart type. Afin de déceler des variations temporelles à court terme, on a analysé sur une base trimestrielle certains échantillons provenant de points d'échantillonnage en Ontario; les données obtenues pour trois ans, c'est-à-dire de 1982 à 1984, sont présentées au tableau 5.

On a prélevé des échantillons de sédiments à deux endroits seulement le long de la rivière des Outaouais. Le point où se jette le ruisseau Bissett dans la rivière des Outaouais est situé en amont de la prise d'eau et du point de déversement des effluents de la centrale nucléaire (DCN), tandis que le point d'échantillonnage à Petawawa est situé en aval des laboratoires nucléaires de l'EACL de Chalk River (Ontario). Le premier point a été choisi comme point de référence (concentration de fond), car il représente les conditions naturelles dans la rivière des Outaouais; l'autre point d'échantillonnage devrait refléter l'effet des effluents provenant des installations nucléaires. Les données sur les sédiments prélevés aux deux points d'échantillonnage sur la rivière des Outaouais sont présentées au tableau 6.

En général, la radioactivité causée par la présence dans les eaux de surface de radionucléides, notamment le Ra-226 et le U total, était légèrement supérieure dans les échantillons prélevés en 1983 par rapport à ceux prélevés au cours des autres années (tableaux A-1 à A-4 et tableau 4). Les concentrations d'uranium total et de Ra-226 étaient toutes supérieures à la limite de détection, tandis que les concentrations des produits de fission (notamment le Cs-137 et le Sb-125) étaient en général inférieures à cette limite. Comme l'indique ces données, les limites de détection variaient d'un échantillon à l'autre et même pour un radionucléide donné. En effet, la concentration de fond décelée par le détecteur peut fluctuer ce qui influe sur les limites de détection.

Dans le cas de l'uranium total, les valeurs moyennes annuelles à tous les points d'échantillonnage variaient de 0.90 à 2.05 μg/L. La plus faible valeur mesurée était de 0.10 μg/L pour le lac Baker en 1982 et la plus forte de 6.90 μg/L pour la rivière Rouge en 1983. Les concentrations moyennes annuelles de Ra-226 variaient de 2.13 à 4.60 mBq/L; la plus faible n'était que de 0.74 mBq/L dans les échantillons prélevés dans le ruisseau McAskill et dans la rivière Souris en 1984, tandis que la plus élevée était de 23.68 mBq/L pour la rivière Petitcodiac en 1983. Les concentrations les plus élevées de Cs-137, de Sb-125 et de tritium étaient de 13.69 mBq/L à Ranger Bight (1982), de 22.24 mBq/L dans le ruisseau McAskill (1983) et de 17.46 Bq/L dans le lac Baker (1981) respectivement. Il n'a pas été possible de calculer les concentrations moyennes de ces radionucléides, car elles étaient pour la plupart inférieures à la limite de détection.

Tableau 4. Concentration moyenne des radionucléides dans les eaux de surface, 1981 à 1984

Point d'échantillonnage*	Concentration moyenne†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	U total (μg/L)
1. Ranger Bight (Lab.)	4.44±1.11	<13.69	<7.78	5.95±2.34	0.70±0.08
2. Rivière Annapolis (N.-É.)	1.48±0.30	<3.97	<8.98	6.02±1.49	0.43±0.05
3. Ruisseau McAskill (N.-É.)	1.48±0.60	<6.66	15.56±9.45	4.70±1.15	0.30±0.04
4. Ruisseau Moose (N.-B.)	1.66±0.64	<3.39	<8.88	6.81±1.78	1.37±0.26
5. Rivière Petitcodiac (N.-B.)	12.67±10.14	<4.44	<7.17	7.88±1.73	2.24±1.91
6. Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	2.19±0.86	0.70±0.32	<1.81	8.00±0.88	0.48±0.08
7. Rivière Niagara à Fort Érié (Ont.)	1.66±0.26	<1.00	1.05±0.40	5.12±2.06	0.28±0.17
8. Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	1.43±0.53	1.52±0.33	<2.40	8.56±1.67	0.57±0.27
9. Rivière Souris près de Coulter (Man.)	2.13±1.22	<4.46	<6.93	7.64±5.46	2.39±1.14
10. Rivière Rouge (Man.)	3.88±3.92	5.50±4.33	<7.52	<6.33	4.74±3.05
11. Rivière Sask. à la frontière Man.-Sask.	5.92±1.70	<4.63	<8.35	<9.92	0.99±0.07
12. Rivière Poplar E. (Sask.)	7.03±0.37	<3.50	<7.24	<6.48	2.84±0.76
13. Lac Baker (T.N.-O.)	1.57±0.70	4.22±1.77	<10.19	12.24±4.68	0.16±0.08
Moyenne	3.66	–	–	–	1.35

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.
†Les valeurs signalées pour chaque radionucléide sont les moyennes des données disponibles, avec leur écart type.

Tableau 5. Analyse trimestrielle d'échantillons d'eaux de surface en Ontario

Année	Point d'échantillonnage*		Concentration de radionucléide†				
			Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	U total (µg/L)
1982	Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake	1Q‡	2.33±0.44	1.27±0.78	<1.81	6.70±2.37	0.40±0.02
		2Q	3.77±0.67	–	–	8.18±3.44	0.43±0.07
		3Q	1.74±0.07	0.52±0.18	0.37±0.33	12.28±3.44	0.54±0.08
		4Q	1.52±0.07	0.96±0.18	<0.30	7.55±1.52	0.65±0.10
		Moyenne	2.34±1.02	0.92±0.38	<1.81	8.68±2.48	0.50±0.11
	Fleuve Saint-Laurent à l'île Wolfe	1Q	0.74±0.37	2.04±0.81	<2.40	10.14±2.37	–
		2Q	1.48±0.74	2.74±0.81	2.04±1.78	9.47±3.66	0.40±0.66
		3Q	1.48±0.15	0.85±0.67	<1.70	10.32±3.44	2.11±0.32
		4Q	1.55±0.22	1.41±0.63	<1.33	11.84±1.52	0.42±0.06
		Moyenne	1.31±0.38	1.76±0.81	<2.40	10.44±1.00	0.98±0.98
1983	Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake	1Q	0.63±0.04	0.28±0.25	<0.47	9.25±2.81	0.60±0.09
		2Q	1.11±0.07	<0.23	<0.61	<4.11	0.62±0.09
		3Q	2.22±0.07	0.36±0.23	1.16±0.77	9.69±2.81	0.60±0.09
		4Q	1.48±0.07	0.77±0.22	<0.74	6.03±2.37	0.50±0.08
		Moyenne	1.36±0.67	0.47±0.26	<1.16	8.32±2.00	0.58±0.05
	Fleuve Saint-Laurent à l'île Wolfe	1Q	1.18±0.15	<0.74	<1.50	8.62±2.81	0.50±0.08
		2Q	0.78±0.07	1.36±0.55	<1.12	<4.11	0.44±0.07
		3Q	0.93±0.07	1.45±0.57	<1.45	7.55±2.81	0.42±0.06
		4Q	1.48±0.11	1.05±0.76	<1.09	5.60±2.37	0.43±0.06
		Moyenne	1.09±0.31	1.29±0.21	<1.50	7.26±1.53	0.45±0.04
1984	Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake	1Q	2.22±0.07	0.53±0.34	1.28±0.84	<2.07	0.42±0.06
		2Q	–	–	–	7.44±1.90	0.47±0.07
		3Q	1.85±0.07	<0.24	<0.80	5.99±1.90	0.42±0.06
		4Q	1.11±0.07	0.73±0.31	<0.58	7.56±1.97	0.48±0.07
		Moyenne	1.73±0.56	<0.73	<1.28	7.00±0.87	0.45±0.03
	Rivière Niagara à Fort Érié	1Q	1.48±0.07	<0.29	<0.59	7.73±2.15	0.39±0.06
		2Q	1.48±0.07	<0.25	<0.77	4.81±1.89	0.50±0.08
		3Q	1.85±0.07	<0.34	<0.63	8.07±1.90	0.38±0.06
		4Q	1.11±0.04	0.50±0.29	<0.68	5.70±1.96	0.33±0.05
		Moyenne	1.48±0.30	<0.50	<0.77	6.58±1.58	0.40±0.07
	Fleuve Saint-Laurent à l'île Wolfe	1Q	1.11±0.07	<0.50	<1.17	7.66±2.15	0.50±0.08
		2Q	1.11±0.07	<0.48	<0.99	8.19±1.90	0.43±0.06
		3Q	1.11±0.07	1.01±0.50	<1.02	9.87±1.91	0.38±0.06
		4Q	1.11±0.07	<0.47	<1.16	6.16±1.97	0.43±0.06
		Moyenne	1.11±0.07	<1.01	<1.17	7.97±1.53	0.43±0.05

* Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.
† Les erreurs signalées avec les mesures trimestrielles sont les erreurs statistiques des mesures individuelles, y compris celles pour la radioactivité naturelle. Cependant, les erreurs signalées avec les moyennes trimestrielles sont les écarts types.
‡Q représente un trimestre.

Tableau 6. Concentration des radionucléides dans les sédiments de la rivière des Outaouais, 1982

Point d'échantillonnage*	Concentration de radionucléide (Bq/g)†				
	Pb-210	Ra-226	Cs-137	Co-60 (1173 keV)	Co-60 (1332 keV)
Rivière des Outaouais/ruisseau Bissett (Ont.)	0.56±0.02	0.04±0.01	0.39±0.01	<0.01	<0.01
Rivière des Outaouais/Petawawa (Ont.)	0.57±0.02	0.04±0.01	1.32±0.01	0.21±0.01	0.21±0.01

* Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.
† Les erreurs signalées avec chaque mesure sont les erreurs statistiques des mesures individuelles, y compris celles pour la radioactivité naturelle.

DISCUSSION

Nature de la radioactivité

La radioactivité dans l'environnement est causée par la désintégration de radionucléides individuels d'origine naturelle ou anthropique. Les radionucléides de la chaîne de désintégration du U-238 et du Th-232 sont les principaux radionucléides naturels (figures 1 et 2). Les radionucléides d'origine anthropique proviennent essentiellement des retombées atmosphériques consécutives aux essais nucléaires et au cycle du combustible nucléaire. Le tableau 1 résume les propriétés fondamentales de certains radionucléides importants du point de vue environnemental.

Contrairement à la Commission mixte internationale qui s'est surtout occupée de mesurer la concentration des radionucléides d'origine anthropique dans les Grands lacs (Durham, 1974; Durham et Joshi, 1984; Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs, 1981, 1983), le programme dont il est question ici comportait le dosage de l'uranium et du radium qui sont des espèces dont l'origine est principalement naturelle. Cependant, la concentration de ces radionucléides peut avoir augmenté à la suite d'activités anthropiques. Par exemple, les concentrations de radium dans l'eau et dans les sédiments sont élevées à proximité de l'embouchure de la rivière Serpent, en raison de l'extraction et de la préparation de minerais uranifères dans le district d'Elliot Lake en amont (Hart et McKee, 1985; Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs, 1983; Meyerhof, 1984). La rivière Serpent se jette dans le havre Serpent dans le lac Huron.

Concentrations des radionucléides et tendances

D'après les moyennes annuelles (lorsqu'il était possible de les calculer) à tous les points d'échantillonnage et d'après d'autres données, la concentration des radionucléides dans les eaux de surface ne semble pas varier (tableaux A-1 à A-4 de l'annexe). En général, on ne prévoit aucune variation pour les radionucléides naturels, c'est-à-dire l'uranium total et le Ra-226, car les apports de sources naturelles sont généralement constants. Par contre, les concentrations des radionucléides d'origine anthropique (Cs-137, Sb-125 et tritium) devraient diminuer avec le temps, prévoit-on, comme on l'a d'ailleurs constaté dans les Grands lacs (Durham et Joshi, 1984; Tracy et Prantl, 1983). Cette baisse de concentration des produits de fission dans les Grands lacs a été attribuée principalement à une réduction des retombées radioactives à la suite de la signature, en 1963, du traité interdisant les essais nucléaires dans l'atmosphère. Cependant, la République populaire de Chine et la France ont effectué un certain nombre d'essais nucléaires dans l'atmosphère, et les retombées radioactives dans les écosystèmes aquatiques au Canada consécutives à ces essais ont été étudiées par plusieurs auteurs (Direction générale de l'hygiène du milieu, 1979; Roy et coll., 1981). L'absence de toute tendance manifeste pour le Cs-137, le Sb-125 et le H-3 peut être imputée au fait que, contrairement à la plupart des autres études sur les Grands lacs, le nombre d'essais nucléaires atmosphériques effectués pendant la durée de la présente étude était très faible.

Césium-137 et antimoine-125

Comme on l'a mentionné précédemment, la concentration de la plupart des radionucléides d'origine anthropique était inférieure aux limites de détection, notamment dans le cas du Cs-137 et du Sb-125 (tableau 4). Ces données sont généralement dans la même plage que celles qui ont été déterminées pour les Grands lacs au début des années 1980 (Durham et Joshi, 1981, 1984; Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs, 1981, 1983). En plus de la diminution des apports dus aux retombées, le Cs-137 et le Sb-125 ont une forte réactivité vis-à-vis des sédiments. Par exemple, Tracy et Prantl (1983) ont estimé que 93 % et 96 % de l'activité totale du Cs-137 se trouvait dans les sédiments des lacs Supérieur et Huron respectivement. Dans le cas du Sb-125, cette valeur variait de 25 % à 50 %. Ainsi, les concentrations de Cs-137 et de Sb-125 dans la phase aqueuse seraient plutôt faibles.

Tritium

Les concentrations du tritium dans les eaux de surface étaient généralement supérieures à la limite de détection (tableaux A-1 à A-4 de l'annexe et tableau 4), mais elles se situaient essentiellement dans la même plage que celles qui ont été mesurées récemment dans les eaux libres des Grands lacs (Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs, 1983). La plus grande partie du tritium présent dans l'environnement aqueux provient des essais nucléaires dans l'atmosphère (Santé et Bien-être social Canada, 1979b; U.S. EPA, 1981). Là encore, ces concentrations ont diminué pour la peine dans l'environnement aquatique à la suite du traité de 1963 interdisant les essais nucléaires dans l'atmosphère. Kathren (1984) a résumé les données disponibles sur les plans d'eau et les cours d'eau aux États-Unis; selon lui, les concentrations mesurées en 1983 étaient inférieures d'un ordre de grandeur à celles de 1963.

Les centrales nucléaires peuvent également rejeter d'importantes quantités de radionucléides dans leur environnement immédiat. Récemment, la Direction de la qualité des eaux (1985b) a résumé les données sur les radionucléides pour évaluer les concentrations de radionucléides à Rolphton juste en amont de la centrale nucléaire (DCN) et des laboratoires nucléaires de l'EACL à Chalk

River. Elle a ensuite comparé ces valeurs aux concentrations de radionucléides à Pembroke juste en aval de ces deux installations. D'après les données moyennes recueillies sur cinq ans (de 1979 à 1983) à Pembroke, les concentrations de Cs-137 et de tritium ont doublé, mais celles de Sr-90 sont restées les mêmes.

Uranium et radium-226

La radioactivité d'origine naturelle provient essentiellement des radionucléides de la chaîne de désintégration de l'uranium (U-238 et U-235) et du thorium (Th-232). La concentration moyenne de l'uranium dans l'écorce terrestre est d'environ 1 µg/g (rapport de la Commission royale de C.-B., 1980; Cothern et Lappenbusch, 1983); par contre, la concentration du thorium est légèrement supérieure. Selon Hess et coll. (1985), le rapport de l'activité moyenne du Th à celle du U varie entre 1.2 et 1.5; ainsi, en l'absence de procédés d'enrichissement ou d'appauvrissement, les concentrations de radionucléides de la chaîne de désintégration du Th-232 seront supérieures à celles des radionucléides de la série du U-238. Toutefois le thorium est très insoluble et sa concentration dans l'eau sera très faible.

Selon la Commission royale de C.-B. (1980), la concentration d'uranium est de l'ordre de 0.1 µg/L (ppb) environ dans la plupart des eaux de surface. Cette concentration peut atteindre 1 à 5 µg/L dans les eaux de surface en contact avec une minéralisation en uranium. Dans des cas exceptionnels, elle peut atteindre 50 µg/L si les eaux sont en contact avec des gisements uranifères.

Pour ce qui est de la radioactivité naturelle dans l'environnement aquatique, l'uranium et le radium-226 sont considérés comme les radionucléides les plus importants. L'uranium naturel est composé essentiellement de trois isotopes : le U-238 (99.27 %), le U-235 (0.72 %) et le U-234 (0.006 %) (Cothern et Lappenbusch, 1983). Dans des conditions d'équilibre, 1 µg d'uranium naturel a une activité de 2.48 mBq (0.67 pCi).

Le tableau 4 donne les concentrations moyennes de U total et de Ra-226 (données recueillies sur quatre ans) et celles d'autres radionucléides. Les concentrations moyennes de U total variaient de 0.16 µg/L dans le lac Baker à 4.74 µg/L dans les eaux de la rivière Rouge, soit une moyenne de 1.35 µg/L. Ces concentrations se trouvaient essentiellement dans la plage signalée pour les eaux en contact avec une minéralisation en uranium (1 à 5 µg/L, Commission royale de C.-B., 1980). La plupart des eaux de surface drainent des zones de minéralisation en uranium ou en charbon (tableau 2); les concentrations mesurées se trouvaient donc dans la plage prévue. Cependant, les concentrations les plus faibles mesurées dans le lac Baker (0.16 µg/L) étaient plutôt inattendues, puisque ce dernier draine un bassin riche en uranium. Les minéralisations en charbon peuvent contenir jusqu'à 1000 µg/g de U (Commission royale de C.-B., 1980).

Cothern et Lappenbusch (1983) ont revu la littérature sur l'uranium dans les eaux naturelles du globe et en particulier aux États-Unis. La plage de concentrations dans les cours d'eau variait de 0.02 µg/L dans le Saint-Laurent (Canada) à 1.6 µg/L dans le Gange et le Brahmaputra en Inde. Dans le cas des eaux de surface aux É.-U., ces auteurs citent une valeur de 1 pCi/L (1.5 µg/L), valeur qui est très proche de celle donnée au tableau 4 pour les eaux de surface au Canada, soit 1.35 µg/L.

Dans le cas des Grands lacs, les concentrations d'uranium étaient légèrement inférieures (seulement 0.08 à 0.59 µg/L) en 1981 et en 1982 (Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs, 1983). Cependant, les études sur la radioactivité dans l'eau, effectuées en Colombie-Britannique de 1979 à 1981, ont révélé des concentrations assez élevées d'uranium dans certaines eaux de surface et plus encore dans des eaux souterraines et des eaux de puits (B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health, 1980, 1981). En général, on a signalé des valeurs s'approchant/dépassant 10 µg/L dans les zones de minéralisation en uranium de Summerland et de Nelson.

Variations avec le temps

On a analysé trimestriellement certains échantillons au lieu d'analyser des échantillons composites sur une base annuelle, afin de déceler des variations avec le temps. Les données sont présentées au tableau 5. Les écarts types consignés avec les moyennes trimestrielles sont habituellement bien inférieurs à 50 % de la valeur de la moyenne, ce qui n'est pas élevé compte tenu que la plupart des concentrations de radionucléides sont à peine supérieures aux limites de détection.

Au cours des études sur la radioactivité dans l'eau effectuées en Colombie-Britannique, la plupart des échantillons ont été analysés sur une base mensuelle (B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health, 1980). Les données signalées ont révélé des variations cycliques; les concentrations d'uranium mesurées de février à avril étaient supérieures à celles mesurées en mai et en juin (leur tableau 14). Selon les auteurs, de telles variations pourraient peut-être s'expliquer par l'absence de données disponibles sur le débit des eaux. Dans le cas des variations à court terme (sur une base quotidienne et hebdomadaire), les auteurs ont conclu que les «variations de la composition avec le temps semblaient être faibles».

Ainsi, à la lumière des résultats obtenus jusqu'à présent, il faut considérer que les échantillons d'eau composites analysés annuellement sont suffisants à l'heure actuelle.

Concentration des radionucléides dans les sédiments

Les sédiments peuvent constituer un puits ou une source de polluants réactifs, notamment de radionucléides. La quantité importante de radioactivité présente dans les phases aqueuse et solide dépend des concentrations relatives de radionucléides dans les phases respectives; ainsi, les radionucléides peuvent passer d'une phase à l'autre selon les gradients de concentration (Tracy et Prantl, 1983). Dans les eaux qui s'écoulent, les radionucléides peuvent être transportés en solution véritable ou sur de fines particules (Martin et Meybeck, 1979). Dans le cas du fleuve Saint-Laurent, Lupien et Grondin (1984) ont estimé que plus de la moitié des radionucléides naturels mesurés dans la phase aqueuse étaient associés ou fixés à des matières en suspension.

Le tableau 6 donne les concentrations de radionucléides dans les sédiments. Les concentrations de Pb-210 et de Ra-226 d'origine naturelle se situent essentiellement dans la même plage que celle signalée pour le lac Huron par Durham et Joshi (1980b). Les concentrations de Cs-137 semblent également se trouver dans la plage mesurée pour les sédiments du lac Huron; cependant, après une étude plus approfondie, on constate que les concentrations sont plus élevées dans les sédiments de la rivière des Outaouais, car, en fait, celles mesurées dans les sédiments de fond du lac Huron représentent les retombées des essais nucléaires accumulées sur plusieurs années. La présence de Co-60 dans les sédiments de la rivière des Outaouais témoigne également de la présence dans la zone étudiée de radionucléides provenant des laboratoires de Chalk River.

Le tableau 2 indique l'emplacement des stations d'échantillonnage. L'endroit où le ruisseau Bissett se jette dans la rivière des Outaouais est situé en amont de deux installations nucléaires, soit une centrale nucléaire (DCN) et les laboratoires nucléaires de l'EACL à Chalk River (Ontario). L'autre point d'échantillonnage, près de Petawawa, est situé en aval des deux installations nucléaires; ainsi, la différence de concentration entre ces deux points devrait révéler l'impact des deux installations nucléaires sur la qualité des sédiments.

Les données du tableau 6 permettent de constater rapidement l'impact des deux installations nucléaires sur les concentrations de radionucléides dans les sédiments. Les concentrations de césium-137 et de Co-60 étaient très élevées, tandis que celles de Pb-210 et de Ra-226 restaient inchangées. Cependant, si l'on examine les données sur la qualité des eaux de la rivière des Outaouais pour évaluer l'impact radiologique de ces deux installations nucléaires, on constate une augmentation du Cs-137 par un facteur d'environ deux à Pembroke (situé en aval) par rapport aux concentrations naturelles mesurées à Rolphton (Direction de la qualité des eaux, 1985b). Ainsi, il y aurait eu migration du Cs-137 et peut-être du Co-60 de la phase aqueuse vers les sédiments. Tracy et Prantl (1983) ont conclu au phénomène inverse, c'est-à-dire que le Cs-137 passerait maintenant des sédiments vers la phase aqueuse dans les lacs Supérieur et Huron, en raison de la diminution des retombées au cours des dernières années. On ne dispose pas de données sur les sédiments provenant d'autres relevés de plans d'eau.

Effets de la radioactivité sur la santé

L'eau potable peut constituer une voie importante de pénétration des radionucléides chez le biote et chez l'être humain (Santé et Bien-être social Canada, 1979b; U.S. EPA, 1981). Plus particulièrement pour ce qui est de l'absorption d'uranium aux États-Unis, Cothern et Lappenbusch (1983) ont estimé que 85 % des quantités absorbées provenait de l'eau, tandis que le reste, c'est-à-dire 15 % provenait des aliments.

Lignes directrices pour la qualité de l'eau

Afin de protéger le grand public contre une exposition excessive aux rayonnements, Santé et Bien-être social Canada a proposé en 1978 des lignes directrices révisées pour la consommation de l'eau potable; les limites recommandées sont données au tableau 7. Ces lignes directrices sont basées sur une relation linéaire dose-réponse, comme le recommande la Commission internationale de protection radiologique (CIPR) dans ses publications nº 26 et nº 30 (CIPR, 1977; 1979). On a calculé une valeur pour la concentration maximale admissible (CMA) dans l'eau potable; cette concentration correspond à 1 % (0.5 mSv) de la valeur limite de l'équivalent de dose annuelle en milieu de travail

Tableau 7. Lignes directrices pour les radionucléides dans l'eau potable

Radionucléide	Concentration maximale admissible (Bq/L)	Concentration cible (Bq/L)
Césium-137	50	5
Iode-131	10	1
Radium-226	1	0.1
Strontium-90	10	1
Tritium	40 000	4000
Uranium (mg/L)	0.02	≤0.001

Source : *Lignes directrices pour la qualité de l'eau potable au Canada, 1978*. Santé et Bien-être social Canada (1979a).

recommandée par la CIPR pour une exposition continue, alors que la concentration cible (CC) ne correspond qu'à 10 % (0.05 mSv) de la CMA. On peut tolérer des concentrations de radionucléides supérieures à la CMA si la période de concentration accrue est brève et si la concentration moyenne annuelle reste inférieure à cette limite.

Le tableau 4 donne les concentrations moyennes de radionucléides d'origine naturelle (U total et Ra-226) et d'origine anthropique (Cs-137, Sb-125 et H-3). Comme on l'a mentionné précédemment, les concentrations de radionucléides d'origine anthropique sont généralement très faibles. Les concentrations de tritium et de Cs-137 étaient bien inférieures aux concentrations cibles recommandées de 4000 et de 5 Bq/L respectivement. Les concentrations de Sb-125 sont également très faibles, mais il n'existe aucune ligne directrice à ce sujet tant au Canada qu'aux États-Unis (Santé et Bien-être social Canada, 1979a; U.S. EPA, 1981).

Dans tous les cas, la concentration de Ra-226 d'origine naturelle est inférieure à la concentration cible de 100 mBq/L (tableau 7). La Monenco Consultants Limited (1981) était arrivée aux mêmes conclusions au cours de l'étude de 99 sources d'approvisionnement municipales en eau potable en Alberta; la concentration mesurée de Ra-226 variait de 3.7 à 11.1 mBq/L (0.1 à 0.3 pCi/L). Toutefois, les données étaient différentes pour l'uranium total; en effet, la concentration à cinq stations d'échantillonnage et la moyenne globale de 1.35 µg/L dépassaient la concentration cible qui est de 1.0 µg/L. Par contre, la concentration d'uranium dans les Grands lacs n'a jamais été supérieure à la CC en 1981 et en 1982 (Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs, 1983). Cependant, certains échantillons d'eau prélevés en Colombie-Britannique présentaient une concentration supérieure à la CMA de 20 µg/L durant certaines périodes d'échantillonnage mensuelles (B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health, 1980; 1981).

Dose radiologique engagée

La dose engagée annuelle[1] constitue une évaluation quantitative du risque radiologique que comporte l'ingestion d'eau contenant des radionucléides. Dans la présente étude, les doses ont été calculées à partir des données du tableau 4. On a utilisé la même méthode que celle de la Commission mixte internationale (Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs, 1983). On a supposé une consommation quotidienne de 2.2 L (803 L/an) pour les calculs. La conversion en dose à partir de la concentration de radionucléides est basée sur la limite annuelle d'absorption (LAA) qui donne un équivalent de dose effectif de 5 rem (0.05 Sv). La LAA et les facteurs de conversion concentration-dose sont donnés au tableau A-5 de l'annexe. À l'exception de l'uranium total, toutes les autres données sur les radionucléides mentionnées au tableau 3 sont exprimées en unités de radioactivité du SI (becquerel). Ainsi, avant de calculer la dose, on a converti les données relatives à l'uranium en unités de radioactivité, en supposant un équilibre entre les trois isotopes, c'est-à-dire le U-238, le U-235 et le U-234 (tableau A-6 de l'annexe).

Les doses radiologiques pour l'organisme entier sont données au tableau 8. Comme on peut le constater, la valeur globale de l'équivalent de dose effective engagée due aux radionucléides d'origine naturelle (U total et Ra-226) était de beaucoup supérieure à celle due aux radionucléides artificiels (Cs-137, Sb-125 et H-3). Ainsi, on peut résumer de la façon suivante la contribution de chaque radionucléide à la dose :

U total > Ra-226 > Tritium > Cs-137 > Sb-125

C'est l'eau de la rivière Rouge qui donnerait la dose engagée la plus élevée, tandis que celle du lac Baker donnerait l'équivalent de dose effectif le plus faible.

Contrairement aux eaux des Grands lacs, c'est le U total et le Ra-226 d'origine naturelle qui contribuaient le plus à la dose engagée (Durham et Joshi, 1984; Tracy et Prantl, 1983). Dans le premier cas, c'est le Cs-137 et le Sr-90 qui contribuaient le plus à la dose engagée. Cependant, dans les deux cas, la dose engagée était inférieure à la valeur cible de 1 mrem (10 µSv) stipulée dans l'Accord de 1978 sur la qualité de l'eau dans les Grands lacs (Commission mixte internationale, 1978).

L'équivalent de dose effective engagée dû à la consommation d'eaux de surface peut être comparé à d'autres concepts. Récemment, la Commission de contrôle de l'énergie atomique (1985) a proposé la notion de dose de *minimis*, ou dose insignifiante, selon laquelle il ne sera pas nécessaire d'obtenir une autorisation pour des matières contaminées si la dose engagée annuelle est inférieure à 50 µSv. Disons en passant que cette dose engagée est la même que celle résultant de la consommation continue d'eau à la «concentration cible» (Santé et Bien-être social Canada, 1979a). Ainsi, ces doses sont de beaucoup supérieures à celles résultant de la consommation d'eaux de surface (tableau 8).

[1] Le calcul de la dose engagée est basé sur la limite annuelle d'absorption (LAA) recommandée dans la publication nº 30 de la CIPR. La LAA est la quantité d'un radionucléide donné qui, une fois ingérée ou inhalée, entraîne un apport correspondant à un équivalent de dose engagée de 5 rem (0.05 Sv) sur la période ultérieure de 50 ans.

Tableau 8. Dose radiologique engagée pour l'organisme entier après utilisation d'eaux de surface comme eau potable

Point d'échantillonnage*	Équivalent de dose effective engagée (μSv)				
	Ra-226	Cs-137	Sb-125	Tritium	U total
1. Ranger Bight (Lab.)	1.05	<0.15	<0.0041	0.0821	1.12
2. Rivière Annapolis (N.-É.)	0.35	<0.04	<0.0047	0.0831	0.69
3. Ruisseau McAskill (N.-É.)	0.35	<0.07	0.0082	0.0649	0.48
4. Ruisseau Moose (N.-B.)	0.39	<0.04	<0.0047	0.0940	2.20
5. Rivière Petitcodiac (N.-B.)	2.99	<0.05	<0.0039	0.1087	3.59
6. Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	0.52	<0.01	<0.0010	0.1104	0.77
7. Rivière Niagara à Fort Érié (Ont.)	0.39	<0.01	<0.0006	0.0707	0.45
8. Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	0.34	0.02	<0.0013	0.1181	0.91
9. Rivière Souris près de Coulter (Man.)	0.50	<0.05	<0.0037	0.0682	3.83
10. Rivière Rouge (Man.)	1.31	0.06	<0.0040	<0.0874	7.60
11. Rivière Sask. à la frontière Man.-Sask.	1.40	<0.05	<0.0044	<0.1369	1.59
12. Rivière Poplar E. (Sask.)	1.66	<0.04	<0.0038	<0.0894	4.55
13. Lac Baker (T.N.-O.)	0.37	0.05	<0.0054	0.1689	0.26

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.

Tableau 9. Concentrations moyennes d'uranium et de radium et rapports des activités U-238/Ra-226 dans les eaux de surface, 1981 à 1984

Point d'échantillonnage*	Concentration de radionucléide (mBq/L)		Rapport des activités U-238/Ra-226
	U-238†	Ra-226	
Ranger Bight (Lab.)	8.56	4.44	1.93
Rivière Annapolis (N.-É.)	5.26	1.48	3.55
Ruisseau McAskill (N.-É.)	3.67	1.48	2.48
Ruisseau Moose (N.-B.)	16.76	1.66	10.10
Rivière Petitcodiac (N.-B.)	27.40	12.67	2.16
Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	5.87	2.19	2.68
Rivière Niagara à Fort Érié (Ont.)	3.42	1.66	2.06
Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	6.97	1.43	4.87
Rivière Sask. à la frontière Man.-Sask.	12.11	5.92	2.05
Rivière Poplar E. (Sask.)	34.74	7.03	4.94
Lac Baker (T.N.-O.)	1.96	1.57	1.25
Moyenne	11.50	3.78	3.04

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.
†On a calculé la concentration du U-238 à partir de la concentration d'uranium total et d'un facteur de 0.9927.

On peut relier les doses dues aux rayonnements aux risques prévus de cancer. La Commission de contrôle de l'énergie atomique (1985) a proposé un facteur de conversion moyen en risque de 2×10^{-2} par sievert pour les hommes et les femmes de tout âge. D'après ce facteur de conversion, la consommation d'eau de la rivière Rouge, qui présente la dose la plus élevée, entraînerait un risque bien inférieur à 10^{-6} par année; ce degré de risque est généralement considéré comme insignifiant (Santé et Bien-être social Canada, 1979b; U.S. EPA, 1981).

Rapports des activités U-238/Ra-226

L'uranium total se compose essentiellement d'uranium-238 (99.27 % en masse). Le radium-226 est un produit de filiation de la série des chaînes de désintégration du U-238. On suppose généralement que l'uranium-238 et ses produits de filiation sont en équilibre depuis très longtemps; cependant, il y a habituellement un certain déséquilibre dans les matériaux géologiques altérés (Commission royale de C.-B., 1980). Dans des conditions d'équilibre, les deux radionucléides devraient avoir la même activité; ainsi, tout écart de ce rapport est une mesure de l'importance du déséquilibre et des mobilités relatives de ces deux radionucléides.

On a calculé, à partir des données sur l'uranium (tableau 4), l'activité du U-238 (tableau A-6 de l'annexe); l'activité du U-238 et du Ra-226 et le rapport de leur activité sont donnés au tableau 9. Ces rapports variaient de

1.25 dans le lac Baker à un peu plus de 10 dans les eaux du ruisseau Moose, la moyenne globale étant de 3.04. Dans le tableau 8, on ne donne pas les rapports d'activités pour la rivière Souris et la rivière Rouge; la valeur de ces rapports est assez grande soit 13.72 et 14.94 respectivement. Ces rapports laissent simplement supposer que le U-238 est bien plus mobile que le Ra-226.

Veska (1983) a étudié la migration des radionucléides contenus dans les déblais de minerais uranifères près de Bancroft, en Ontario. I. a constaté que le U-238 migrait généralement beaucoup plus loin de sa source que le Ra-226 (sa figure 5.23). King et coll. (1982) et Krishnaswami et coll. (1982), qui ont étudié les mobilités relatives de ces deux radionucléides, sont arrivés à la même conclusion.

Au cours d'une autre étude, Lupien et Grondin (1984) ont étudié les concentrations de radionucléides naturels dans le fleuve Saint-Laurent. D'après leur tableau 1, ils ont calculé des rapports d'activités U-238/Ra-226 de 2.5 à 24.0. En outre, il semblerait, d'après les K_d calculés pour ces deux radionucléides (tableau 2 dans leur ouvrage), que le U-238 est beaucoup plus mobile que le Ra-226.

Des mécanismes ont été proposés pour expliquer les mobilités relatives des deux radionucléides : il y aurait adsorption du radium ionique sur des surfaces solides, principalement par échange d'ions, tandis que les complexes anioniques de l'uranium avec les carbonates et les ions hydroxyle seraient très stables et très mobiles en milieu aqueux (King et coll., 1982; Krishnaswami et coll., 1982; Veska, 1983).

On a effectué des analyses de régression pour voir s'il était possible de prévoir la concentration du Ra-226 dans les eaux de surface à partir de la concentration d'uranium total. Dans ces analyses le U total était considéré comme une variable indépendante et le Ra-226 comme une variable dépendante. La figure A-1 de l'annexe donne une relation curviligne lorsqu'on utilise toutes les valeurs; on a obtenu pour le coefficient de corrélation (r) une valeur non significative de seulement 0.542. Cependant, si l'on exclut les deux valeurs extrêmes, soit celles pour la rivière Souris et la rivière Rouge, on obtient un coefficient de corrélation très significatif de 0.776** (n = 11, $P < 0.01$) (figure A-2 de l'annexe). Néanmoins, si l'on fait passer la droite de régression par l'origine, on obtient un coefficient de corrélation légèrement inférieur mais encore très significatif (r = 0.761**), comme le montre la figure 5. Ainsi, on peut conclure que, pour la plupart des échantillons d'eau, il existe une relation des concentrations de U total et de Ra-226, et qu'il est possible d'évaluer la concentration d'un des radionucléides à partir de la concentration de l'autre.

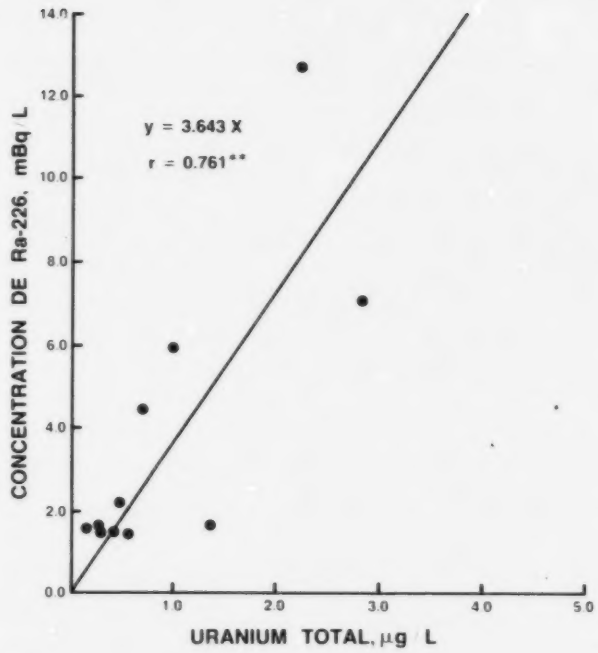


Figure 5. Relation des concentrations d'uranium total et de Ra-226 dans les eaux de surface, quand on fait passer la droite de régression par l'origine (11 stations d'échantillonnage; ** indiquent $P < 0.01$).

CONCLUSIONS

Les concentrations de radionucléides mesurées dans certaines eaux de surface sont généralement faibles. On n'a décelé aucune variation régulière avec le temps au cours de la période de contrôle. À l'exception de la concentration du U total à certains endroits, celles de tous les autres radionucléides étaient bien inférieures aux concentrations cibles stipulées dans les lignes directrices pour la qualité de l'eau potable. La dose radiologique engagée provenant de toutes les eaux de surface était inférieure à la dose visée de 10 µSv (1 mrem) stipulée dans l'Accord de 1978 sur la qualité de l'eau dans les Grands lacs. On peut donc conclure que les concentrations de radionucléides dans les eaux de surface ne présentent actuellement aucun danger pour la santé.

D'après les données limitées sur les sédiments, les deux installations nucléaires—DCN et les laboratoires nucléaires de Chalk River—situées sur la rivière des Outaouais, sont responsables d'une augmentation de la radioactivité dans les sédiments en aval. Il y aurait lieu d'obtenir d'autres données semblables pour d'autres endroits.

Les données sur l'activité du U total et du Ra-226 laissent supposer que dans la plupart des eaux de surface il existe une relation entre les concentrations de ces radionucléides. D'après les rapports d'activités, on a conclu qu'il y a un déséquilibre entre ces deux radionucléides et que l'uranium total est bien plus mobile que le Ra-226.

RECOMMANDATIONS CONCERNANT LES CONTRÔLES FUTURS

Les données disponibles sur la radioactivité dans les eaux de surface au Canada ne sont guère nombreuses. Le Programme national de contrôle des radionucléides permet d'obtenir de telles données grâce à une approche systématique.

Objectifs

Les objectifs de ce rapport étaient de résumer les données radiologiques disponibles, de dégager les tendances concernant la qualité de l'eau et d'évaluer l'importance des résultats pour l'environnement. Les objectifs du programme ont, à toutes fins pratiques, été atteints, si l'on se base sur les résultats présentés ici.

Les premiers millimètres de sédiments sont très réactifs (Hart et McKee, 1985; Lerman, 1979; Tracy et Prantl, 1983) et peuvent libérer des radionucléides ou en absorber à partir de l'eau. Le biote (poisson) agit comme un intermédiaire dans la chaîne alimentaire et peut aussi être utilisé comme moyen de contrôle dans certaines circonstances.

Actuellement, on recommande d'élargir le programme pour qu'il englobe des paramètres associés comme les sédiments et le biote (poisson), ce qui permettrait d'avoir une vue d'ensemble de l'écosystème aquatique.

Points d'échantillonnage

Actuellement, on a contrôlé la radioactivité de l'eau dans 13 endroits, et parfois moins, situés dans six provinces différentes et dans les Territoires du Nord-Ouest. Par contre, on a contrôlé la qualité des sédiments dans deux endroits seulement en Ontario en 1982. Comme on l'a mentionné précédemment, la plupart des endroits ont été choisis parce qu'on soupçonnait qu'ils subissaient les effets néfastes de minéralisations en uranium ou en charbon et d'activités reliées au cycle du combustible nucléaire.

Il existe, en Colombie-Britannique, dans le nord de la Saskatchewan et dans les Territoires du Nord-Ouest, de vastes zones de minéralisation en uranium qui ne font pas encore l'objet de contrôles suffisants. En Colombie-Britannique plus particulièrement, on a trouvé dans certaines eaux de la région de Summerland et de Nelson des concentrations d'uranium supérieures à la «concentration maximale admissible» qui est de 20 µg/L. Le bassin de l'Athabasca, situé dans le nord de la Saskatchewan, renferme des gisements uranifères très riches. De même, on trouve dans les Territoires du Nord-Ouest, à proximité de la région du lac Baker, d'autres minéralisations en uranium qui ne sont pas contrôlées.

On recommande donc d'inclure les stations suivantes dans la liste du Programme national de contrôle des radionucléides :

i) Colombie-Britannique :
   a) Rivière Kettle à Midway.
   b) Rivière Okanagan à Penticton.
   c) Rivière Okanagan en aval de Oliver.
   d) Rivière Thompson à Spences Bridge.

ii) Territoires du Nord-Ouest :
   a) Rivière des Esclaves à Fitzgerald (Alberta).
   b) Rivière Thelon en aval de la sortie d'eau du lac Schultz.
   c) Rivière Anigaq en aval du lac Audra.

iii) Saskatchewan et Manitoba :
   a) Rivière Beaver en amont de Beauval.
   b) Lac Wollaston à la rivière Fond du Lac et à la rivière Cochran.
      Note : les données provenant de ces deux stations seront fournies par la province de la Saskatchewan.
   c) Ruisseau Sunshine - la station sera révisée après discussions avec Parcs Canada.

iv) Québec :
   a) Deux stations : l'une en amont et l'autre en aval de la centrale nucléaire de Gentilly.
   b) Lac David (au sud-est de Maniwaki).

Méthodes d'analyse des radionucléides

Les radionucléides actuellement dosés sont le U total, le Ra-226, le Cs-137, le Sb-125 et le tritium. Santé et Bien-être social Canada a émis des lignes directrices pour le U total, le Ra-226, le I-131, Cs-137, le Sr-90 et le tritium. Nous avons omis le I-131 et le Sr-90.

L'iode-131 présent dans les eaux de surface provient essentiellement des centrales nucléaires et des retombées atmosphériques à la suite d'essais d'armes nucléaires. Ce radionucléide a une brève période de seulement huit jours et ne constitue donc pas un danger à long terme. Par contre,

le Sr-90 compte parmi les radionucléides délétères à période longue, présents dans les retombées et dans les effluents des réacteurs nucléaires; sa période est de 28 ans.

Les radionucléides de la chaîne de désintégration du Th-232 ont été dosés à l'occasion (Durham et Joshi, 1979b; Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs, 1983). Récemment, on reconnaît de plus en plus que, malgré sa faible concentration dans l'eau et les sédiments, le Th-232 et ses produits de filiation peuvent constituer un danger important pour la santé. Dans un rapport récent présenté à Environnement Canada, la firme Beak Consultants a recommandé d'inclure le Th-232 et ses descendants radioactifs dans les programmes de contrôle régulier de la qualité de l'eau (Hart et McKee, 1985).

On recommande donc d'ajouter le Sr-90 à la liste des radionucléides actuellement contrôlés et de rayer de celle-ci le Sb-125 car, jusqu'ici, sa concentration mesurée dans l'eau est très faible. On recommande en outre d'ajouter à cette liste le Th-232 et certains autres isotopes du thorium (p. ex. Th-230 et Th-228). Il serait également souhaitable d'inclure la mesure des rayonnements globaux α et β comme technique de dépistage des radionucléides d'origine naturelle et anthropique respectivement.

La section des radionucléides de l'Institut national de recherche sur les eaux, qui analyse tous les échantillons, est à la fine pointe de l'actualité en matière de méthodes de dosage. Il existe actuellement des méthodes pour doser les radionucléides recommandés mais il faudrait un surcroît d'appareils et de personnel pour effectuer ces dosages.

Autres bases de données sur les radionucléides

Il est possible d'obtenir les données sur la qualité des eaux de surface compilées par le ministère de l'Environnement de l'Ontario (particulièrement celles concernant le réseau hydrographique de la rivière Serpent), le ministère de l'Environnement de la Saskatchewan et le Saskatchewan Research Council. On recommande d'évaluer ces données et d'inclure celles qui sont pertinentes dans la base de données de la Direction de la qualité des eaux (NAQUADAT).

Régions présentant un problème particulier

Les régions mentionnées ci-dessous constituent actuellement un problème en ce qui concerne la radioactivité de l'eau :

1) Port Radium (Echo Bay)/Rayrock (T.N.-O) : On trouve dans ces deux régions des aires de rejet qui ne sont plus utilisées et qui renferment des résidus miniers produits au cours de l'extraction et de la préparation de minerais uranifères à la fin des années 1950. En 1981, les Indiens dénés ont prétendu que la radioactivité émise dans les cours d'eau avait été telle que les radionucléides incorporés dans la chaîne alimentaire avaient influé sur la santé des familles vivant dans la région. Santé et Bien-être social Canada a étudié ce problème; d'après les résultats préliminaires la concentration du Ra-226 dans le lac Sherman est supérieure à la «concentration cible». Les eaux du lac Sherman se déversent dans le réseau hydrographique de la rivière Marian.

ii) Rivière Serpent (Ontario) : Le réseau hydrographique de la rivière Serpent draine le district d'Elliot Lake où s'effectuent depuis le début des années 1950 l'extraction et le traitement à grande échelle de minerais d'uranium. Cette rivière se jette dans le havre Serpent qui est dans le lac Huron. Plusieurs études ont révélé que la concentration de radium et d'autres radionucléides dans les eaux de cette rivière était bien supérieure aux concentrations de fond; cependant, la tendance est à la baisse.

Certains hauts fonctionnaires de Santé et Bien-être social Canada et du ministère de l'Environnement de l'Ontario ont exprimé le désir de voir la Direction de la qualité des eaux s'intéresser aux problèmes de la radioactivité de l'eau du site mentionné ci-dessus. On recommande donc que la Direction de la qualité des eaux collabore avec ces deux organismes gouvernementaux.

iii) Sites de dépôt de déchets nucléaires des États-Unis près de la frontière canadienne : le Department of Energy des États-Unis a annoncé qu'il envisageait plusieurs endroits comme site de dépôt de déchets nucléaires. Quatre de ces sites, situés au Minnesota, sont dans le bassin versant de la rivière Rouge, et un seul site, au Maine, est dans le bassin versant de la rivière St. Croix.

Il serait souhaitable d'obtenir des données de base sur ces rivières. Il existe déjà une station de contrôle sur la rivière Rouge, et on recommande d'en établir une sur la rivière St. Croix.

Échantillonnage dans plusieurs milieux

Les sédiments et le biote (poisson) sont les deux autres composantes importantes des écosystèmes aquatiques. Par conséquent, on recommande d'inclure ces paramètres dans le programme de contrôle à certains endroits.

Fréquence de prélèvement

On prélève actuellement des échantillons d'eau sur une base mensuelle et on les combine sur une base annuelle. Pour la plupart des points d'échantillonnage, un échantillon représentatif est ensuite expédié à l'INRE qui l'analyse. On a analysé certains échantillons trimestriellement, et non annuellement, pour tenter de déceler des variations avec le temps. D'après les résultats, les variations sont acceptables.

Ainsi, on recommande de poursuivre l'analyse des échantillons composites sur une base annuelle. En présence d'une concentration anormale de radionucléides dans un échantillon composite, il faudrait alors analyser plus fréquemment des échantillons provenant de cet endroit. On pourrait aussi prélever plus fréquemment des échantillons.

Paramètres non radiologiques

On sait que les concentrations de radionucléides dans les eaux sont reliées à certains autres paramètres physico-chimiques. Par conséquent, on recommande de mesurer aussi des paramètres comme le pH, la conductance spécifique et les matières totales dissoutes.

Méthodes de prélèvement

Les méthodes utilisées actuellement pour prélever les échantillons semblent appropriées; nous ne faisons donc aucune recommandation à ce sujet.

Assurance de la qualité de l'échantillonnage sur le terrain

On rédige actuellement un manuel sur l'assurance de la qualité de l'échantillonnage sur le terrain. On recommande que toute modification pertinente résultant de cette compilation soit communiquée aux personnes chargées de l'échantillonnage sur le terrain.

Techniques de laboratoire

Les techniques de laboratoire mentionnées au chapitre 2 sont suivies rigoureusement pour assurer la qualité de l'échantillonnage. Ainsi, les échantillons prélevés dans le cadre du programme sont analysés à l'INRE qui utilise un matériel et des techniques de pointe (Durham et Joshi, 1979b; Joshi, 1985; Joshi et Durham, 1976). Au cours des trois années précédentes, on a cherché à mettre au point des techniques fiables de spectrométrie gamma à faible énergie pour doser directement (méthodes non destructives) divers radionucléides. Ces techniques sont actuellement évaluées de façon rigoureuse avec des étalons radioactifs environnementaux obtenus récemment. Toutes les données recueillies à l'INRE sont évaluées sur place et sont comparées dans le cadre de divers programmes d'intercomparaison. Par conséquent, on recommande de poursuivre ces activités sans les modifier.

Rapport d'interprétation

Les données sur les radionucléides dans les échantillons prélevés au cours d'une année sont généralement disponibles vers le milieu de l'année civile suivante. On recommande de signaler annuellement toute anomalie et de préparer à tous les trois ans un rapport sommaire comparant les résultats avec ceux obtenus au cours des années précédentes et avec les valeurs publiées dans la littérature.

Examen du programme

On recommande de réexaminer entièrement le programme à tous les trois ans.

Coûts

Les échantillons d'eau sont actuellement prélevés par les membres des bureaux régionaux de la Direction de la qualité des eaux, et analysés par la section des radionucléides de l'INRE. Comme on l'a fait remarquer précédemment, les analyses représentent un aspect important et coûteux du programme. Après réception des échantillons à l'INRE, il faut environ 0.25 AP pour consigner, préparer et analyser les échantillons, puis expédier les résultats au bureau central de la Direction de la qualité des eaux. En outre, on estime à environ 5000 $ annuellement le coût des produits chimiques, des solutions étalons, des produits de référence authentifiés et de l'entretien du matériel. Ces chiffres ne tiennent pas compte des sommes nécessaires pour acheter et remplacer le matériel.

Si l'on suit les recommandations formulées dans ce rapport, le prélèvement d'échantillons d'eau risque à lui seul de doubler ces chiffres. En outre, si l'on décide d'inclure certains échantillons de sédiments et de poissons, les coûts prévus se situeront entre 0.6 et 0.8 AP et les opérations et l'entretien entre 20 000 $ et 25 000 $ annuellement.

Mise en application

On recommande d'appliquer, au début de l'année financière 1986-1987, les modifications proposées, dès que les décisions auront été prises à ce sujet.

REMERCIEMENTS

Au moment de la rédaction du présent rapport, le Programme national de contrôle des radionucléides était en application depuis quatre ans, soit de 1981 à 1984. Tous les

échantillons d'eau ont été prélevés par les membres de bureaux régionaux de la Direction de la qualité des eaux que nous tenons à remercier vivement pour leur aide. Nous tenons à remercier S.P. Thompson, de l'Institut national de recherche sur les eaux, qui a participé aux analyses initialement effectuées sous la supervision de R.W. Durham. Nous tenons aussi à exprimer notre gratitude à C. Barraud, P. Vasudev et R. Krauel d'Environnement Canada et à D.P. Meyerhof, B.L. Tracy et à E. Veska de Santé et Bien-être social Canada qui nous ont formulé des propositions utiles et fourni des documents.

RÉFÉRENCES

B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health. 1980. Variations in the Uranium and Radioactivity Levels of Potable Surface and Ground Water in the Okanagan and West Kootenay Regions of British Columbia. Imprimeur de la reine pour la Colombie-Britannique, Victoria (Colombie-Britannique).

B.C. Ministries of Energy, Mines and Petroleum Resources, and of Health. 1981. Variations in Uranium and Radioactivity Levels in Surface and Ground Water at Selected Sites in British Columbia, April 1980 - March 1981. Imprimeur de la reine pour la Colombie-Britannique, Victoria (Colombie-Britannique).

CIPR (Commission internationale de protection radiologique). 1977. Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Annals of the ICRP, ICRP Publication 26, Pergamon Press, Oxford, U.K.

CIPR. 1979. Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. Annals of the ICRP, ICRP Publication 30, Vol. 2, No. 3/4, Pergamon Press, Oxford, U.K.

Commission de contrôle de l'énergie atomique. 1985. The Basis for Exempting the Disposal of Certain Radioactive Materials from Licensing. Consultative Document C-85, Commission de contrôle de l'énergie atomique, Ottawa, Canada.

Commission mixte internationale. 1978. Accord de 1978 sur la qualité de l'eau dans les Grands lacs. Commission mixte internationale, Windsor (Ontario).

Commission royale de C.-B. 1980. Royal Commission of Inquiry into Uranium Mining. Commissioner's Report, Vol. 1, Imprimeur de la reine pour la Colombie-Britannique, Victoria (Colombie-Britannique).

Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs. 1981. 1981 Report on Great Lakes Water Quality, Appendix – Great Lakes Surveillance. Rapport présenté à la Commission mixte internationale, Windsor (Ontario).

Conseil de la qualité de l'eau des Grands lacs. 1983. 1983 Report on Great Lakes Water Quality, Appendix – Radioactivity. Rapport présenté à la Commission mixte internationale, Windsor (Ontario).

Cothern, R.C., et W.L. Lappenbusch. 1983. Occurrence of uranium in drinking water in the U.S. Health Phys., 45: 89-99.

Direction générale de l'hygiène du milieu. 1979. La radioactivité ambiante au Canada, 1973-1976. 79-EH-37, Santé et Bien-être social Canada, Ottawa.

Direction de la qualité des eaux. 1980. Program for assessing radionuclides in the aquatic environment. Rapport inédit, Direction de la qualité des eaux, Direction générale des eaux intérieures, Environnement Canada, Ottawa.

Direction de la qualité des eaux. 1985a. Activités de la Direction de la qualité des eaux. Direction de la qualité des eaux, Direction générale des eaux intérieures, Environnement Canada, Ottawa.

Direction de la qualité des eaux. 1985b. Radioactivity in the Ottawa River. Rapport inédit, Direction de la qualité des eaux, Direction générale des eaux intérieures, Environnement Canada, Ottawa.

Durham, R.W. 1974. Radionuclide levels in the Great Lakes Waters – 1973. Étude nº 48, Série scientifique, Direction générale des eaux intérieures, Centre canadien des eaux intérieures, Environnement Canada, Burlington (Ontario).

Durham, R.W., et S.R. Joshi. 1979a. Radionuclide concentrations in two sewage treatment plants on western Lake Ontario, Canada. J. Radioanal. Chem., 54: 367-370.

Durham, R.W., et S.R. Joshi. 1979b. Determination of ^{228}Th, ^{230}Th, and ^{232}Th in environmental samples from uranium mining and milling operations. J. Radioanal. Chem., 52: 181-188.

Durham, R.W., et S.R. Joshi. 1980a. Investigation of Lake Ontario water quality near Port Granby radioactive waste management site. Water, Air Soil Pollut., 13: 17-26.

Durham, R.W., et S.R. Joshi. 1980b. Recent sedimentation rates, ^{210}Pb fluxes, and particle settling velocities in Lake Huron, Laurentian Great Lakes. Chem. Geol., 31: 53-66.

Durham, R.W., et S.R. Joshi. 1981. Concentrations of radionuclides in Lake Ontario water from measurements on water treatment plant sludges. Water Res., 15: 83-86.

Durham, R.W., et S.R. Joshi. 1984. Dose equivalent commitments from fallout radionuclides in the open waters of the Great Lakes, 1973-1981. Environ. Monitoring Assessment, 4: 405-417.

Environnement Canada. 1983. Échantillonnage pour la qualité de l'eau. Direction de la qualité des eaux, Direction générale des eaux intérieures, Environnement Canada, Ottawa.

Erdtmann, G., et W. Soyka. 1979. *The Gamma Rays of the Radionuclides: Tables for Applied Gamma Ray Spectrometry*. Verlag Chemie, New York.

Hart, D.R., et P.M. McKee. 1985. Study to assess the distribution of radionuclides in the aquatic ecosystem in the vicinity of the Serpent River mouth. Rapport préparé pour Environnement Canada au nom de Beak Consultants Limited, Mississauga (Ontario).

Hess, C.T., J. Michel, T.R. Horton, H.M. Prichard, et W.A. Coniglio. 1985. The occurrence of radioactivity in public water supplies in the United States. Health Phys., 48: 553-586.

Johnson, H., et M. Tutiah. 1985. Nuclear Information Series – Radiation is Part of Your Life. Énergie atomique du Canada Limitée, Whiteshell Nuclear Research Establishment, Pinawa (Manitoba).

Johnson, J.R. et D.W. Dunford. 1983. Dose conversion factors for intakes of selected radionuclides by infants and adults. AECL-7919, Énergie atomique du Canada Limitée, Chalk River (Ontario).

Joshi, S.R. 1984. ^{137}Cs, ^{226}Ra and total U in fish from Lakes Ontario, Erie, Huron, and Superior during 1976-1982. Water Pollut. Res. J. Can., 19: 110-119.

Joshi, S.R. 1985. Determination of thorium-228, thorium-230, and thorium-232 in sediments by anion exchange and nuclear spectrometry. Anal. Chem., 57: 1023-1026.

Joshi, S.R., et R.W. Durham. 1976. Determination of ^{210}Pb, ^{226}Ra and ^{137}Cs in sediments. Chem. Geol., 18: 155-160.

Kathren, R.L. 1984. *Radioactivity in the Environment: Sources, Distribution, and Surveillance*. Chapter 5, pp. 93-119, Harwood Academic Publishers, New York.

King, P.T., J. Michel, et W.S. Moore. 1982. Ground water geochemistry of ^{228}Ra, ^{226}Ra and ^{222}Rn. Geochim. Cosmochim. Acta, 46: 1173-1182.

Krishnaswami, S., W.C. Graustein, K.K. Turekian, et J.F. Dowd. 1982. Radium, thorium and radioactive lead isotopes in groundwaters: application to the in situ determination of adsorption-desorption rate constants and retardation factors. Water Resour. Res., 18: 1633-1675.

Lerman, A. 1979. *Geochemical Processes: Water and Sediment Environments*. John Wiley & Sons, Inc., New York.

Lupien, M.D., et D. Grondin. 1984. Natural radionuclides in the St. Lawrence River. Water Pollut. Res. J. Can., 19: 120-128.

Martin, J.M., et M. Meybeck. 1979. Elemental mass-balance of material carried by major world rivers. Marine Chem., 7: 173-206.

Meyerhof, D.P. 1984. Revisions to the Guidelines for Canadian Drinking Water Quality Radiological Characteristics. Communication présentée à la cinquième conférence annuelle de l'Association canadienne de radioprotection, Banff (Alberta).

Monenco Consultants Limited. 1981. Survey of naturally occurring radionuclides in Alberta municipal water supplies. Préparé pour Municipal Engineering Branch, Alberta Environment, Edmonton (Alberta).

Platford, R.F., A.G. Bobba, et S.R. Joshi. 1984. The Port Granby radioactive waste management site. Water Pollut. Res. J. Can., 19: 90-96.

Roy, J.-C., J. Turcotte, J.-E. Côté, et P. Beaulieu. 1981. Fallout of ^{85}Co, ^{60}Co and ^{54}Mn in eastern Canada from nuclear weapons testing. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32: 423-428.

Santé et Bien-être social Canada. 1979a. *Recommandations pour la qualité de l'eau potable au Canada, 1978*. Préparées par le Groupe de travail fédéral-provincial sur l'eau potable du Comité consultatif fédéral-provincial de l'hygiène du milieu et du travail, Approvisionnements et Services Canada, Hull (Québec).

Santé et Bien-être social Canada. 1979b. *Recommandations pour la qualité de l'eau potable au Canada, 1978 – Pièces à l'appui*. Préparées par le Groupe de travail fédéral-provincial sur l'eau potable du Comité consultatif fédéral-provincial de l'hygiène du milieu et du travail, Approvisionnements et Services Canada, Hull (Québec).

Tracy, B.L., et F.A. Prantl. 1983. 25 years of fission product input to Lakes Superior and Huron. Water Air Soil Pollut., 19: 15-27.

U.S. EPA (U.S. Environmental Protection Agency). 1981. Radioactivity in Drinking Water. EPA 570/9-81-002, Office of Drinking Water, U.S. Environmental Protection Agency, Washington, D.C.

Veska, E. 1983. Origin and subsurface migration of radionuclides from waste rock at an abandoned uranium mine near Bancroft, Ontario. Thèse de doctorat, Université de Waterloo, Waterloo (Ontario).

Whicker, E.W., et V. Schultz. 1982. *Radioecology: Nuclear Energy and the Environment*. Vol. I, Chapter 4, pp. 73-128, CRC Press, Inc., Boca Raton, Florida.

Annexe

Tableau A-1. Concentration des radionucléides dans les eaux de surface, 1981

Point d'échantillonnage*	Concentration de radionucléide†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	U total (µg/L)
Rivière Annapolis (N.-É.)	1.85±1.11	–	–	–	0.43±0.06
Ruisseau McAskill (N.-É.)	1.48±0.37	–	–	3.88±3.22	0.29±0.04
Ruisseau Moose (N.-B.)	1.48±0.37	–	–	5.81±1.74	1.60±0.20
Rivière Petitcodiac (N.-B.)	6.66±0.74	–	–	7.33±2.37	1.50±0.20
Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	3.33±0.37	–	–	–	0.39±0.06
Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	2.22±0.37	–	–	–	0.43±0.06
Rivière Sask. à la frontière Man.-Sask.	7.40±0.74	–	–	9.92±3.22	1.00±0.20
Rivière Souris près de Coulter (Man.)	2.96±0.37	–	–	15.73±1.74	3.60±0.50
Rivière Poplar E. (Sask.)	6.66±0.74	–	–	6.48±3.22	3.40±0.50
Lac Baker (T.N.-O.)	1.11±0.37	–	–	17.46±1.74	0.13±0.02
Moyenne	3.52	–	–	9.52	1.28

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.
†Les erreurs signalées avec chaque mesure sont les erreurs statistiques des mesures individuelles, y compris celles pour la radioactivité naturelle.

Tableau A-2. Concentration des radionucléides dans les eaux de surface, 1982

Point d'échantillonnage*	Concentration de radionucléide†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	U total (µg/L)
Ranger Bight (Lab.)	4.44±0.37	13.69±1.85	<5.55	8.62±2.15	0.73
Rivière Annapolis (N.-É.)	1.11±0.37	<1.85	<5.55	4.96±2.15	0.41
Ruisseau McAskill (N.-É.)	1.48±0.37	6.66±1.48	8.88±4.07	<2.18	0.25
Ruisseau Moose (N.-B.)	1.11±0.37	<1.85	8.88±4.44	6.03±2.15	1.43
Rivière Petitcodiac (N.-B.)	18.50±0.74	4.44±1.85	<3.70	8.18±2.15	0.33
Rivière Sask. à la frontière Man.-Sask.	6.29±1.11	<2.98	<8.35	–	1.05
Rivière Souris près de Coulter (Man.)	3.33±0.37	<1.11	5.92±4.07	4.96±1.92	0.93
Rivière Poplar E. (Sask.)	7.03±0.74	<2.53	5.52±4.73	–	3.16
Lac Baker (T.N.-O.)	1.48±0.37	2.96±1.11	5.18±4.07	14.84±1.92	0.10
Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	2.34±1.02	0.92±0.38	<1.81	8.68±2.48	0.50±0.11
Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	1.31±0.38	1.76±0.81	<2.40	10.44±1.00	0.98±0.98
Moyenne	4.40	–	–	–	0.90

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.
†Les erreurs signalées avec chaque mesure sont les erreurs statistiques des mesures individuelles, y compris celles pour la radioactivité naturelle.

Tableau A-3. Concentration des radionucléides dans les eaux de surface, 1983

Point d'échantillonnage*	Concentration de radionucléide†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	U total (µg/L)
Ranger Bight (Lab.)	5.55±0.74	<3.48	<7.78	4.29±1.74	0.61±0.09
Rivière Annapolis (N.-É.)	1.48±0.37	3.97±2.55	8.98±7.40	7.07±1.74	0.50±0.02
Ruisseau McAskill (N.-É.)	2.22±0.74	<2.56	22.24±8.47	5.51±1.74	0.34±0.05
Ruisseau Moose (N.-B.)	2.59±0.37	<3.39	<8.42	9.47±1.81	5.77±0.86
Rivière Petitcodiac (N.-B.)	23.68±0.74	<2.57	<6.93	10.06±1.81	4.84±0.73
Rivière Souris près de Coulter (Man.)	1.48±0.37	<2.86	<6.93	5.99±1.74	2.14±0.32
Rivière Rouge (Man.)	6.66±0.37	8.57±3.03	<7.52	6.33±1.74	6.90±1.03
Lac Baker (T.N.-O.)	2.59±0.37	<4.29	<7.39	9.10±1.81	0.29±0.04
Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	1.36±0.67	0.47±0.26	<1.16	8.32±2.00	0.58±0.05
Rivière Niagara à Fort Érié (Ont.)‡	1.85±0.11	1.00±0.32	1.33±0.91	3.66±2.37	0.16±0.08
Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	1.09±0.31	1.29±0.21	<1.50	7.26±1.53	0.45±0.04
Moyenne	4.60	–	–	7.01	2.05

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.
†Les erreurs signalées avec chaque mesure sont les erreurs statistiques des mesures individuelles, y compris celles pour la radioactivité naturelle.
‡Les données ne s'appliquent qu'au dernier trimestre.

Tableau A-4. Concentration des radionucléides dans les eaux de surface, 1984

Point d'échantillonnage*	Concentration de radionucléide†				
	Ra-226 (mBq/L)	Cs-137 (mBq/L)	Sb-125 (mBq/L)	Tritium (Bq/L)	U total (μg/L)
Ranger Bight (Lab.)	3.33±0.37	<2.58	<5.35	4.94±2.96	0.76±0.11
Rivière Annapolis (N.-É.)	1.48±0.37	<2.28	<5.32	<2.96	0.39±0.06
Ruisseau McAskill (N.-É.)	0.74±0.37	<2.30	<8.56	<2.96	0.32±0.05
Ruisseau Moose (N.-B.)	1.48±0.37	<2.60	<6.99	5.93±2.96	1.09±0.16
Rivière Petitcodiac (N.-B.)	1.85±0.37	<3.08	7.17±5.74	5.93±2.96	2.29±0.34
Rivière Souris près de Coulter (Man.)	0.74±0.37	4.46±2.48	<4.62	3.87±2.96	2.88±0.43
Rivière Rouge (Man.)	1.11±0.37	2.44±2.19	<6.36	<2.96	2.58±0.39
Rivière Sask. à la frontière Man.-Sask.	4.07±0.37	<4.63	<7.84	<2.96	0.91±0.14
Rivière Poplar E. (Sask.)	7.40±0.74	<3.50	<7.24	<2.96	1.97±0.30
Lac Baker (T.N.-O.)	1.11±0.74	5.47±5.01	<10.19	7.58±3.05	0.14±0.02
Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	1.73±0.56	<0.73	<1.28	7.00±0.87	0.45±0.03
Rivière Niagara à Fort Érié (Ont.)	1.48±0.30	<0.50	<0.77	6.58±1.58	0.40±0.07
Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	1.11±0.07	<1.01	<1.17	7.97±1.53	0.43±0.05
Moyenne	2.13	–	–	–	1.12

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.
†Les erreurs signalées avec chaque mesure sont les erreurs statistiques des mesures individuelles, y compris celles pour la radioactivité naturelle.

Tableau A-5. Facteurs relatifs à la dose radiologique engagée pour l'organisme entier, utilisés dans le présent rapport

Radionucléide	Limite annuelle d'absorption (Bq)	Équivalent de dose effective engagée pour une conc. de 1 mBq/L dans l'eau (μSv)
Radium-226	1.7×10^{5}	2.36×10^{-1}
Césium-137	3.7×10^{6}	1.09×10^{-2}
Antimoine-125	7.6×10^{7}	5.28×10^{-4}
Tritium	2.9×10^{9}	1.38×10^{-5}
Uranium total	6.4×10^{5}	6.27×10^{-2}

Note : Les valeurs de la limite annuelle d'absorption sont tirées de l'annexe sur la radioactivité du rapport de 1983 de la CMI sur la qualité de l'eau dans les Grands lacs; les valeurs pour l'uranium naturel (total) ont été tirées de Johnson et Dunford (1983).

Tableau A-6. Dose engagée pour l'organisme entier provenant de l'uranium total dans des eaux de surface utilisées comme source d'eau potable

Point d'échantillonnage*	Concentration de U total		Équivalent de dose effective engagée (μSv)
	μg/L	mBq/L†	
1. Ranger Bight (Lab.)	0.70	17.90	1.12
2. Rivière Annapolis (N.-É.)	0.43	10.99	0.69
3. Ruisseau McAskill (N.-É.)	0.30	7.67	0.48
4. Ruisseau Moose (N.-B.)	1.37	35.03	2.20
5. Rivière Petitcodiac (N.-B.)	2.24	57.27	3.59
6. Rivière Niagara à Niagara-on-the-Lake (Ont.)	0.48	12.27	0.77
7. Rivière Niagara à Fort Érié (Ont.)	0.28	7.16	0.45
8. Fleuve St-Laurent à l'île Wolfe (Ont.)	0.57	14.57	0.91
9. Rivière Souris près de Coulter (Man.)	2.39	61.10	3.83
10. Rivière Rouge (Man.)	4.74	121.19	7.60
11. Rivière Sask. à la frontière Man.-Sask.	0.99	25.31	1.59
12. Rivière Poplar E. (Sask.)	2.84	72.61	4.55
13. Lac Baker (T.N.-O.)	0.16	4.09	0.26

*Les points d'échantillonnage sont indiqués à la figure 3.
†On suppose que les isotopes de l'uranium sont en équilibre; 1 μg de U total = 25.567 mBq (0.691 pCi).

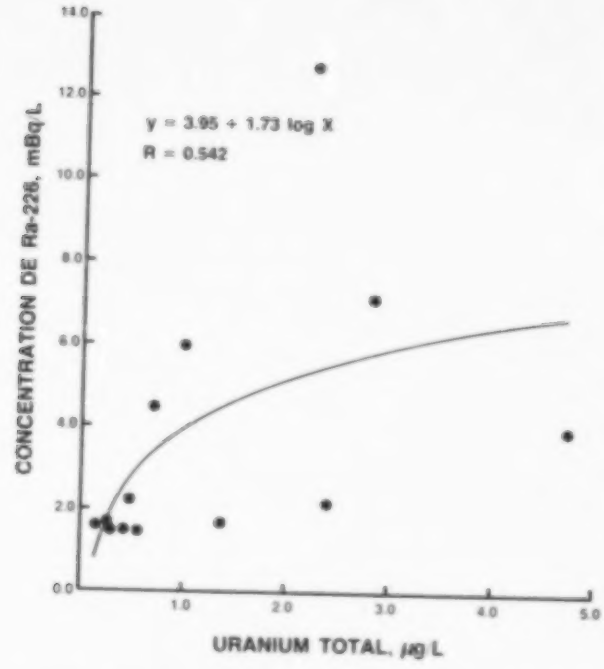


Figure A-1. Relation des concentrations d'uranium total et de Ra-226 dans les eaux de surface (13 stations d'échantillonnage).

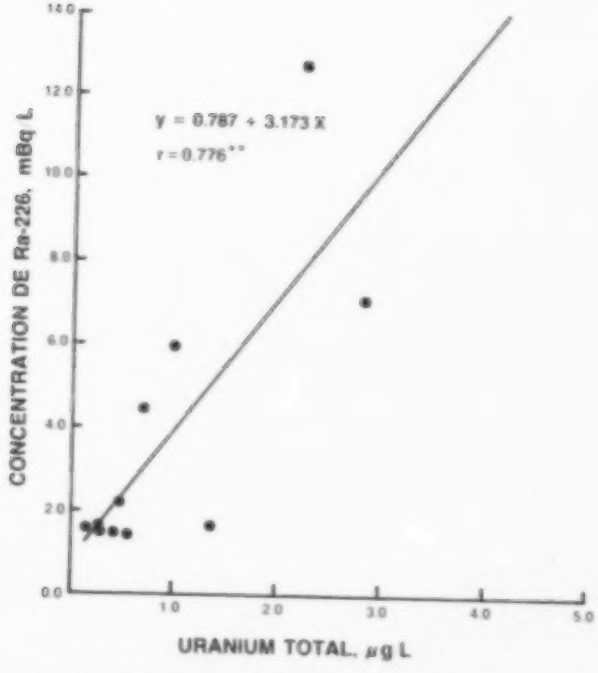


Figure A-2. Relation des concentrations d'uranium total et de Ra-226 dans les eaux de surface (11 stations d'échantillonnage).